



# Contributions relatives des aérosols minéraux et de feux sur la qualité de l'air en Euro-Méditerranée.

Stavros Stromatas

## ► To cite this version:

Stavros Stromatas. Contributions relatives des aérosols minéraux et de feux sur la qualité de l'air en Euro-Méditerranée.. Sciences de la Terre. Ecole Polytechnique X, 2013. Français. NNT: . pastel-00844872

**HAL Id: pastel-00844872**

**<https://pastel.archives-ouvertes.fr/pastel-00844872>**

Submitted on 16 Jul 2013

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**THÈSE DE DOCTORAT DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE**

présentée pour obtenir le grade de

**DOCTEUR de l'ÉCOLE POLYTECHNIQUE**

**SPÉCIALITÉ : Physique et Chimie de l'atmosphère**

par

**Stavros STROMATAS**

**Contributions relatives  
des aérosols minéraux et de feux  
sur la qualité de l'air en Euro-Méditerranée**

Composition du jury :

Mme	Solène TURQUETY	Directrice de thèse
M.	Laurent MENUT	Co-directeur de thèse
M.	Cyrille FLAMANT	Rapporteur
Mme	Isabelle CHIAPELLO	Rapporteur
M.	Philippe DROBINSKI	Examinateur
Mme	Céline MARI	Examinatrice
Mme	Nathalie POISSON	Invitée
Mme	Carole DENIEL	Invitée

Thèse préparée au Laboratoire de Météorologie Dynamique, Centre National de Recherche Scientifique, École Polytechnique, financée par l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie et le Centre National d'Études Spatiales.



---

## Remerciements

J'adresse mes remerciements à toutes les personnes impliquées de façon directe ou indirecte dans la réalisation de ce travail de thèse.

Tout d'abord à Solène Turquety et Laurent Menut, pour avoir accepté de diriger mon travail de thèse. Je les remercie sincèrement pour leur grande disponibilité et leur investissement dans ce travail. A Hélène Chepfer pour ses conseils scientifiques au cours de ces années.

Ensuite, je tiens à remercier les membres du comité de pilotage de ma thèse, Didier Tanré et Bertrand Bessagnet qui m'ont aidé à améliorer cette étude grâce à leurs suggestions scientifiques tout au long de ce travail de thèse. Je suis très reconnaissant envers l'ADEME et le CNES pour avoir soutenu financièrement cette thèse. Je remercie, en particulier, Nathalie Poisson et Carole Deniel, pour leur soutien tout au long de ces années.

Un grand merci à Isabelle Chiapello et Cyrille Flamant, d'avoir accepté d'être les rapporteurs de cette étude. A Céline Mari et Philippe Drobinski qui ont accepté d'évaluer mon travail.

J'adresse également mes remerciements chaleureux à toutes les personnes qui m'ont aidé par leurs compétences et leur amitié : Vincent Noël, Myrto Valari, Manos Flaounas, Grégory Cesana et Jean-Christophe Péré. Un grand merci de tout cœur à Kinou, Michalis, Pantelis, Rodrigo, Thibaud et Thomas pour le soutien psychologique surtout vers la fin de cette thèse (les derniers 36 mois) mais aussi à mes collègues de tous les jours du Laboratoire de Météorologie Dynamique. Enfin, je tiens à remercier tous les membres du LMD de m'avoir accueilli dans les meilleures conditions au sein de ce laboratoire.

Pour finir, je ne saurais jamais assez remercier mes parents, *Βάσω* et *Νίκο*, mon frère *Στέφανο* et *Ιζέλα*, ma compagne durant ces années, pour avoir toujours cru en moi et m'avoir encouragé et soutenu personnellement au cours de cette thèse.

---

## Résumé

Les émissions anthropiques (industrielles, agricoles, de combustion) et naturelles (biogéniques, feux de biomasse, poussières désertiques) sont autant de sources qui affectent notre atmosphère. D'un impact rapide et quantifiable sur la qualité de l'air à une probable modification climatique, leur action est variée en termes d'espèces chimiques émises et de conséquences sur l'environnement et la santé humaine. En plus d'un impact direct localement, les panaches de gaz traces et de particules émis peuvent subir un transport à longue distance. Ce transport induit des modifications de leurs caractéristiques et donc de leur impact. Une mesure locale n'est alors pas suffisante pour comprendre le problème dans son ensemble. Les missions satellitaires apportent alors une information complémentaire déterminante puisqu'elles permettent une observation à l'échelle globale pour de nombreuses espèces. Cette vision globale de la troposphère a en particulier mis en évidence l'importance du transport intercontinental de la pollution et les fortes incertitudes dans sa représentation par les modèles de chimie et transport. Ce travail de thèse a permis d'améliorer la caractérisation et la quantification de l'impact relatif des émissions locales et des espèces transportées à longue distance sur la pollution régionale en se basant sur le couplage entre observations satellitaires et modélisation. Les observations utilisées sont les mesures des réseaux de surface AIRBASE et AERONET pour concentrations et les épaisseurs optiques, des satellites MODIS et PARASOL pour les propriétés optiques des aérosols, du lidar CALIOP pour la structure verticale des panaches. La modélisation a été réalisée avec le modèle météorologique WRF et le modèle de chimie-transport CHIMERE. Afin de comparer directement les résultats des simulations aux mesures, un nouvel outil a été développé. La valeur ajoutée de cet outil par rapport aux outils de calculs de propriétés optiques déjà existants est la simulation de données lidar de niveau 1. Ainsi, ce travail illustre également l'information supplémentaire qui peut être attendue de l'utilisation des observations lidar pour l'analyse des événements de pollution particulaire. Les comparaisons entre modèle et observations ont été réalisées sur la région Euro-Méditerranéen et pendant l'été 2007, période pendant laquelle neuf événements intenses de transport d'aérosols minéraux venant d'Afrique et de feux de forêts sur l'ensemble de la région sont venus s'ajouter aux sources anthropiques et biogéniques. Les principaux résultats montrent une contribution significative de ces sources aux dépassements du seuil de pollution tant au niveau local que régional. Spécifiquement pour les feux, nous avons pu montrer que cette source particulière de particules dans l'atmosphère était responsable à elle seule de 40 à 55% des jours de dépassements cumulés pendant tout l'été et observés en Europe de l'Est. Les informations obtenues ont aussi permis de mettre en évidence les points critiques pour la simulation des aérosols liés aux paramétrisations considérées (distribution en taille des aérosols, hauteur d'injection, diffusion verticale), aux émissions et au transport.



# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>1</b>
1.1	La pollution atmosphérique régionale . . . . .	1
1.2	Etude de la région Euro-Méditerranéenne . . . . .	3
1.2.1	Caractéristiques et morphologie . . . . .	3
1.2.2	Conditions météorologiques et climat . . . . .	3
1.2.3	Différents types d'aérosols . . . . .	4
1.3	Objectifs de la thèse . . . . .	5
1.3.1	Objectifs techniques . . . . .	5
1.3.2	Objectifs scientifiques . . . . .	5
1.4	Plan du manuscrit . . . . .	6
<b>2</b>	<b>Les aérosols atmosphériques : Principales caractéristiques et modélisation</b>	<b>9</b>
2.1	Les différents types d'aérosols . . . . .	9
2.1.1	Origines des aérosols . . . . .	10
2.1.2	Forme et taille des aérosols . . . . .	11
2.1.3	Composition chimique . . . . .	13
2.1.4	Propriétés radiatives . . . . .	15
2.2	Modélisation des aérosols avec CHIMERE . . . . .	16
2.2.1	Principe général du modèle . . . . .	16
2.2.2	Représentation sectionnelle des aérosols . . . . .	18
2.2.3	Les émissions d'aérosols minéraux . . . . .	19
2.2.4	Les émissions des feux de végétation . . . . .	22
2.2.5	Les espèces chimiques particulières . . . . .	23
2.2.6	Transformation des aérosols . . . . .	24
2.3	Conclusions . . . . .	25
<b>3</b>	<b>Observation des aérosols atmosphériques</b>	<b>27</b>
3.1	Mesures au sol . . . . .	27
3.2	Mesures par télédétection . . . . .	29
3.2.1	Impact radiatif des aérosols . . . . .	29
3.2.2	La télédétection des aérosols . . . . .	34
3.2.3	Télédétection passive . . . . .	35
3.2.4	Télédétection active . . . . .	42
3.3	Comparaison inter-instruments de l'AOD en Euro-Méditerranée . . . . .	46
3.4	Conclusions . . . . .	51
<b>4</b>	<b>Variabilité inter-annuelle des aérosols</b>	<b>53</b>
4.1	Introduction . . . . .	53
4.2	Les concentrations près de la surface . . . . .	54
4.2.1	Variabilité spatiale . . . . .	55
4.2.2	Variabilité saisonnière . . . . .	56
4.2.3	Variabilité inter-annuelle . . . . .	57
4.3	Propriétés optiques des aérosols . . . . .	59
4.3.1	Variabilité spatiale . . . . .	60
4.3.2	Variabilité temporelle . . . . .	64
4.3.3	Conclusions . . . . .	66

---

<b>5</b>	<b>Comparaison entre modèles et observations : le simulateur d'observables OPTSIM</b>	<b>69</b>
5.1	Principe du simulateur OPTSIM	70
5.1.1	Simulation des paramètres optiques des aérosols	70
5.1.2	Simulation du signal lidar	72
5.2	Validation sur un cas académique	74
5.2.1	Configuration du simulateur	74
5.2.2	Aerosol optical depth	75
5.2.3	Coefficient de rétrodiffusion atténuée ( $\beta'$ )	76
5.2.4	Rapport de diffusion ( $R'$ ) et de couleur ( $\chi'$ )	76
5.3	Incertitudes dans le calcul des propriétés optiques - Conséquences pour les paramètres lidar	77
5.3.1	Limites de détection CALIOP pour différents types d'aérosols	79
5.4	Application à un cas d'étude réel : transport de poussières désertiques	81
5.4.1	Comparaison entre AERONET, MODIS et CHIMERE	81
5.4.2	Comparaison entre CHIMERE et CALIOP	83
5.5	Conclusions	88
<b>6</b>	<b>Relative impact of sporadic aerosol emissions</b>	<b>91</b>
6.1	Introduction	91
6.2	Methodology	93
6.2.1	Observations	93
6.2.2	Modeling	94
6.3	The case study of summer 2007	96
6.3.1	Meteorological conditions	97
6.3.2	Fire activity	98
6.3.3	Emissions	99
6.3.4	Observed aerosol hotspots	100
6.4	Results	102
6.4.1	General evaluation of the CHIMERE simulations based on surface networks	102
6.4.2	The 19-26 June Dust Episode	113
6.4.3	The 19-31 July Fire Episode	117
6.4.4	The 24-31 August Fire and Dust Episode	126
6.4.5	Relative influences on the regional aerosol load	134
6.5	Conclusions	138
<b>7</b>	<b>Conclusions générales et perspectives de travail</b>	<b>141</b>
	<b>Annexes</b>	<b>145</b>
<b>A</b>	<b>Diagramme de Taylor</b>	<b>145</b>
<b>B</b>	<b>Concentrations mensuelles de PM<sub>2.5</sub> et PM<sub>10</sub> en fonction de la typologie des stations</b>	<b>147</b>
<b>C</b>	<b>Lidar signal simulation for the evaluation of aerosols in chemistry transport models</b>	<b>151</b>

# 1 | Introduction

## 1.1 La pollution atmosphérique régionale

Le développement d'épisodes de pollution dépend à la fois des émissions de polluants (d'origines anthropiques et naturelles), des processus photochimiques et des conditions météorologiques. Les émissions anthropiques regroupent les aérosols issus de l'industrie (e.g. centrales à charbon), du transport (e.g. trafic routier, maritime, aérien), de l'agriculture (élevage, engrais, feux agricoles) ou bien du secteur résidentiel (e.g. chauffage au bois). Les sources naturelles sont d'origine marine (e.g. sels marins), terrigène (e.g. poussière désertique, pollens), biogéniques (végétation) et volcanique (aérosols soufrés).

En plus des polluants atmosphériques gazeux (e.g. ozone, dioxyde d'azote), les particules en suspension dans l'atmosphère (aérosols) s'ajoutent à la longue liste de substances ayant des effets dommageables aussi bien pour la santé humaine que pour l'environnement. Depuis la mise en évidence de leur importance pour l'environnement, les aérosols sont devenus un sujet de préoccupation majeure. Leurs impacts au niveau local et régional mais aussi à plus grande échelle avec le transport intercontinental de polluants, sont étroitement liés à la dégradation de la qualité de l'air ([Monks et al., 2009](#)). A plus grande échelle spatiale et temporelle, les aérosols sont connus pour modifier de manière directe et indirecte les propriétés radiatives de l'atmosphère et par conséquent le climat.

Leur connaissance reste cependant soumise à de nombreuses incertitudes. Les aérosols sont caractérisés par une grande diversité en taille (de quelques nanomètres à une dizaine de micromètres), en composition chimique (e.g. sulfates, nitrates, carbone organique, carbone suie, poussières minérales et industrielles, sels marins) et en forme (e.g. plaquettes, sphéroïdes, cristaux) en fonction de leur origine et de la chimie associée.

Le transport à longue distance de la pollution particulaire est un autre facteur d'une grande importance quant à la pollution atmosphérique particulaire. Une région source spécifique pourra ainsi avoir un impact considérable sur la qualité de l'air dans une région voisine en augmentant les niveaux de fond. Cependant, le rôle du transport varie avec la localisation des émissions considérées (e.g. [Akimoto, 2003](#)) et son impact reste difficile à quantifier.

A l'échelle d'une ville ou d'une région et d'un point de vue de la qualité de l'air, ce type de pollution atmosphérique peut avoir des effets néfastes sur la santé humaine (e.g. [Donaldson et al., 2001](#); [Brunekreef and Holgate, 2002](#); [Davidson et al., 2005](#)). Les effets sanitaires de la pollution particulaire concernent principalement le système respiratoire et cardio-vasculaire. Cependant, la fonction de plusieurs autres organes peut également être influencée ([Kampa and Castanas, 2008](#)). Selon le projet européen Aphekom ("Improving Knowledge and Communication for Decision Making on Air Pollution and Health in Europe") qui a évalué l'impact sanitaire de particules dans 25 grandes villes européennes, les niveaux actuels de concentrations en particules en Europe se traduit par une perte d'espérance de vie de près de deux ans pour les personnes âgées de 30 ans et plus (en fonction de la ville et du niveau moyen de pollution). Cela représente 19000 décès/an sur ces 25 villes, dont environ 80% liés à des maladies cardio-vasculaires. L'importance des particules pour la santé humaine est donc évidente et des dispositions relatives à la qualité de l'air ont été

définies par l'Union Européenne en se basant sur la concentration massique en particules de diamètre aérodynamique inférieur à  $10\ \mu\text{m}$  ( $\text{PM}_{10}$  en  $\mu\text{g m}^{-3}$ ). Les normes existantes pour les particules  $\text{PM}_{10}$  sont fixées à  $40\ \mu\text{g m}^{-3}$  (seuil maximal) pour la concentration moyenne annuelle et à  $50\ \mu\text{g m}^{-3}$  pour la concentration moyenne journalière (seuil à ne pas dépasser plus de 35 fois/an). En revanche le seuil pour les particules de diamètre aérodynamique inférieur à  $2.5\ \mu\text{m}$  ( $\text{PM}_{2.5}$ ) est limitée, pour les concentrations moyennes annuelles, à  $25\ \mu\text{g m}^{-3}$ . La nocivité des aérosols dépend de leur composition, de leur concentration et de leur taille. Généralement, plus une particule est fine plus elle va pénétrer profondément dans les voies respiratoires et donc avoir un impact important sur la santé.

Les aérosols sont aussi connus pour leur effet radiatif, c'est à dire pour leur capacité à atténuer le rayonnement solaire par absorption et/ou par diffusion. Une des premières conséquences de l'effet radiatif des aérosols est la diminution de la visibilité (Bäumer et al., 2008; Vautard et al., 2009). L'extinction du rayonnement par les aérosols est largement corrélée aux émissions anthropiques (Seinfeld and Pandis, 1997). En effet, Vautard et al. (2009) ont constaté un déclin massif (environ 50% en 30 ans) de la faible visibilité dans toute l'Europe, résultant de l'amélioration de la qualité de l'air en Europe dans les deux dernières décennies en raison de politiques de contrôle des émissions anthropiques. Egalement, les interactions entre les aérosols atmosphériques et le rayonnement ont pour conséquence la modification des taux de photolyse et des réactions photochimiques de formation de certains composés gazeux comme l' $\text{O}_3$  (e.g. Dickerson et al., 1997; Jacobson, 1998). Le forçage radiatif des aérosols génère aussi des mécanismes de rétroaction non-linéaires entre particules et météorologie (e.g. Ramanathan et al., 2001). Plus précisément, la modification des flux radiatifs par les aérosols entraîne des changements de la température et de l'humidité atmosphérique ainsi que de la formation de nuages et donc de la précipitation. En revanche, la composition chimique (e.g. Carslaw et al., 2010) et la taille (Pateraki et al., 2012) des aérosols varient en fonction des conditions météorologiques.

En plus d'un effet direct local sur la qualité de l'air et les conditions météorologiques, ces processus peuvent avoir un impact significatif à l'échelle régionale où le développement d'épisodes de pollution particulaire dépend à la fois des émissions de polluants primaires, des processus photochimiques et des conditions météorologiques. Un exemple est la perturbation des cycles biogéochimiques terrestres et océaniques (e.g. Andreae and Crutzen, 1997; Mahowald, 2011). Ceci se produit en modifiant le climat des écosystèmes, et donc les flux biogéochimiques, ou par le dépôt chimique des éléments nutritifs qui stimulent la croissance ou, alternativement, des toxines qui affaiblissent la croissance des écosystèmes. Le dépôt des aérosols acides (tels que les sulfates ou les nitrates) peut aussi provoquer des précipitations anormalement acides avec des conséquences négatives sur la flore et la faune et sur les éléments construits du patrimoine mondial par l'érosion de nombreux matériaux ainsi que la corrosion de certains métaux. Le transport à longue distance des particules est donc un facteur important dans la compréhension de l'ensemble du système.

A l'échelle globale et d'un point de vue climatique, la rétrodiffusion du rayonnement par les aérosols cause un refroidissement du climat terrestre alors que l'absorption provoque son réchauffement (Forster et al., 2007). De manière semi-directe ce réchauffement perturbe l'équilibre thermique de l'atmosphère et donc la formation des nuages. Enfin de manière directe, les aérosols contrôlent en partie la formation des nuages en agissant comme noyaux de condensation des gouttelettes d'eau, mais également en modifiant leurs propriétés optiques, suite à un changement de leurs propriétés microphysiques (e.g. Lohmann and Feichter, 2005).

## 1.2 Etude de la région Euro-Méditerranéenne

Cette thèse est focalisée sur la région Euro-Méditerranéenne, une région avec des caractéristiques morphologiques assez particulières et un climat très contrasté subissant l'influence de nombreuses sources différentes.

Le bassin Méditerranéen est entouré par 21 pays africains, asiatiques et européens. Entre ces régions densément peuplées, fortement industrialisées au nord, et moins peuplées et désertiques plus au sud, nous trouvons des aérosols de combustion fossile, de l'industrie, des transports et de la poussière désertique transportée depuis l'Afrique. De plus, de forts événements de feux de forêts sont un phénomène récurrent surtout pendant la période estivale. Cette concentration des sources de pollution différentes peut exercer des pressions considérables sur la qualité de l'air de la région.

### 1.2.1 Caractéristiques et morphologie

La mer Méditerranée, la plus grande mer intérieure au monde, est presque entièrement fermée étant reliée à l'océan Atlantique seulement par l'étroit détroit de Gibraltar (14,4 km de large et d'une profondeur d'environ 0.3 km). Sa superficie, à l'exclusion de la mer Noire, est d'environ 2.5 millions de km<sup>2</sup> avec une étendue d'environ 3700 km en longitude et 1600 km en latitude. La profondeur moyenne est de 1.5 km avec une valeur maximale de 5.15 km dans la mer Ionienne. Ces caractéristiques morphologiques sont assez particulières. Par exemple, la plupart des autres bassins marginaux ont une étendue et profondeur plus petite (e.g. Baltique) ou ils sont connectés à l'océan à travers des ouvertures beaucoup plus larges (e.g. golfe du Mexique, mer d'Arabie). L'orographie de cette région est aussi assez complexe car elle varie entre paysages marins et côtiers, plaines (e.g. Plaine de Pô) et montagnes (e.g. les Pyrénées, les Alpes). La présence des caractéristiques morphologiques particulières (e.g. péninsules, orographie) a des conséquences importantes sur la circulation atmosphérique et donc sur le budget d'aérosols du pourtour Méditerranéen.

### 1.2.2 Conditions météorologiques et climat

Le climat méditerranéen est caractérisé par des hivers doux et humides, et des étés chauds et secs. Pendant l'hiver, les zones de haute pression dérivent vers l'équateur, et le temps devient davantage dominé par les dépressions de basse pression accompagnées de pluies. En été, les zones de haute pression des zones subtropicales dérivent vers le nord de mai à août et vers le sud de novembre à février. Elles sont coïncidentes avec des températures sensiblement plus élevées et peu de précipitations.

L'important gradient méridien est représenté par la transition des régions chaudes et arides vers un climat humide montagneux avec des glaciers permanents au-delà d'environ 2000 km. Il existe de fortes différences d'albédo entre le nord et le sud (Bolle, 2003). En raison de sa latitude, la mer méditerranée est située dans une zone de transition, où la variabilité des latitudes moyennes et tropicales sont à la fois importantes et en concurrence. La partie nord de la région méditerranéenne présente un climat maritime côtier de l'ouest, tandis que la partie sud est caractérisée par un climat subtropical désertique. Le climat méditerranéen est aussi exposé à la mousson d'Asie du sud en été et le système de hautes pressions de la Sibérie en hiver. La partie sud de la région est en grande partie sous l'influence de la branche descendante de la cellule de Hadley, tandis que la partie nord est plus liée à la variabilité des latitudes moyennes, caractérisé par la NAO (North Atlantic Oscillation) et d'autres mécanismes de téléconnexion de moyenne-latitude (Xoplaki et al., 2004; Hoerling et al., 2004). Ces particularités climatiques favorisent une accumulation



considérable d'aérosols avec des caractéristiques différentes et une haute variabilité spatiale et temporelle (Hodnebrog et al., 2012).

### 1.2.3 Différents types d'aérosols

Le long des côtes Méditerranéennes et principalement au nord du bassin, de nombreuses agglomérations et sites industriels constituent des sources anthropiques importantes qui entraînent des émissions de gaz et de particules qui peuvent être transportées sur de grandes distances vers le sud (Ansmann et al., 2003; Lelieveld et al., 2002). En effet, plusieurs études, basées sur des mesures (e.g. Querol et al., 2009; Putaud et al., 2010) ou des simulations de modèles (e.g. Textor et al., 2006), ont constaté un maximum européen en aérosols par rapport à d'autres régions du nord et d'Europe centrale. D'après l'étude de Putaud et al. (2010) basée sur des mesures de concentration au sol obtenues au cours de la dernière décennie à plus de 60 sites à travers l'Europe, la valeur moyenne annuelle de  $PM_{10}$  et  $PM_{2.5}$  est significativement plus élevée au sud de l'Europe (médian =  $36 \mu g m^{-3}$  contre  $24-26 \mu g m^{-3}$  pour les régions du nord-ouest et du centre) avec un gradient croissant lors du passage des sites ruraux à des sites urbains. D'après la même étude, les principaux constituants de  $PM_{10}$  et de  $PM_{2.5}$  sont généralement des matières organiques (MO),  $SO_4$  et  $NO_3$ . La poussière minérale et les sels marins sont les principaux constituants de plus grosses particules ( $PM_{10} - PM_{2.5}$ ).

Dans la région ouest du bassin, les concentrations de PM présentent une saisonnalité avec un maximum en été en raison d'une fréquence de précipitations diminuée pendant la longue période sèche et des épisodes fréquents de poussières d'origine africaine (Perez et al., 2006; Rodriguez et al., 2007). A l'est du bassin la saisonnalité est moins prononcée et les maxima arrivent plutôt au printemps en raison de la fréquence plus élevée d'épisodes de poussière dans cette région (Koçak et al., 2007). Querol et al. (2009) ont noté un éminent gradient croissant ouest-est et nord-sud le long du bassin méditerranéen pour les  $PM_{10}$  et les  $PM_{2.5}$ . Ces gradients sont attribués à la distance de sources de poussière et la plus haute fréquence et intensité des événements de poussières africaines dans la partie est du bassin par rapport à l'ouest.

Les aérosols solubles sont fortement présents en Méditerranée. D'après Querol et al. (2009) les niveaux de sulfates augmentent progressivement à partir d'avril-mai pour atteindre des niveaux maximaux en mi-été, en raison de la photochimie, de la faible circulation de masses d'air à l'échelle régionale et de l'augmentation de la profondeur de la couche de mélange estivale. Le budget de sulfates à l'est du bassin est plus grand par rapport à l'ouest. Les niveaux de nitrates à l'ouest du bassin présentent aussi une forte variabilité saisonnière avec des maxima pendant les mois plus froids et des valeurs réduites pendant la période estivale. Au contraire, à l'est du bassin, les valeurs de nitrate sont plus élevées pendant l'été par rapport à l'ouest et sont diminuées au cours de l'hiver.

En outre, le bassin est composé de grandes zones forestières périodiquement victimes d'incendies surtout pendant la saison estivale sèche. Les régions au sud de l'Europe sont particulièrement affectées et malgré leur nature sporadique, l'impact des émissions liées aux feux (composés gazeux et aérosols, notamment de  $PM_{2.5}$ ) sur la qualité de l'air peut s'avérer important tant au niveau local mais aussi à échelle régionale avec le transport à longue distance de polluants (e.g. Langmann et al., 2008; Hodzic et al., 2007; Turquety et al., 2007).

## 1.3 Objectifs de la thèse

Cette thèse a pour objectif d'améliorer la caractérisation et la quantification de l'impact relatif des émissions locales et des espèces transportées à longue distance sur la pollution régionale en se basant sur la synergie entre observations satellitaires, mesures au sol et modélisation. Les missions satellitaires apportent en effet une information complémentaire par rapport aux réseaux in situ, qui est déterminante puisqu'elles permettent une observation à l'échelle globale pour de nombreuses espèces. Nous exploitons plus particulièrement les mesures de concentration de particules près de la surface (AIRBASE, EMEP), les observations d'aérosols par les satellites de l'A-Train (AQUA, PARASOL, CALIPSO) ainsi que les mesures au sol du réseau des photomètres AERONET. Ce travail de thèse vise à permettre à la fois une évaluation des sources locales, une meilleure prise en compte du transport à longue distance et une quantification de l'impact relatif des émissions locales et des espèces transportées à longue distance sur la pollution régionale.

### 1.3.1 Objectifs techniques

Les modèles de chimie-transport sont développés pour fournir des champs de concentrations chimiques alors que les observations de la télédétection fournissent des paramètres optiques des aérosols. Par conséquent, une comparaison directe entre modèles et observations n'est pas possible. De plus, les différences sur les caractéristiques (e.g. résolution spatiale, longueur d'onde d'observation) et sur les algorithmes de traitement des données entre les différents satellites peuvent rendre la synergie entre modèle et observations compliquée. Enfin, les inventaires d'émissions utilisés contiennent leurs propres incertitudes. Pour tout cela, nous commençons la description des objectifs de ce travail par les objectifs techniques :

- **Observations** : L'exploitation des différentes observations disponibles requiert une vérification de la cohérence entre les différents capteurs. Pour cela, les capteurs MODIS et PARASOL que nous utilisons dans le cadre de cette thèse sont comparés aux mesures au sol du réseau de photomètres AERONET. Cela nous permet d'identifier les points délicats de chaque instrument pour nos comparaisons.
- **Méthodologie de comparaisons modèle-observations** : La première étape de ce travail concerne le développement d'un outil de comparaison directe entre les observations et les résultats de simulations du modèle. Cet outil permet de traduire les champs de concentration simulés aux mêmes paramètres géophysiques que ceux fournis par les différents instruments considérés. En visant à une meilleure intégration de toutes les observations disponibles, un tel outil doit aussi prendre en compte les capacités spécifiques de chaque instrument utilisé.
- **Modélisation** : En exploitant la contrainte apportée par les mesures des réseaux AIRBASE et AERONET et les observations satellitaires nous réalisons une évaluation des inventaires d'émissions utilisés et de leur variabilité spatiale et temporelle. Egalement, nous évaluons le schéma de diffusion verticale et la structure verticale de panaches en fonction de la distance par rapport à la source d'émissions ainsi qu'autres paramètres clés pour la simulation des aérosols (e.g distribution en taille, composition chimique).

### 1.3.2 Objectifs scientifiques

La réalisation des objectifs techniques précédents va permettre d'aborder la problématique principale de cette thèse qui porte sur la quantification de l'impact relatif de

différentes sources d'aérosols avec un fort intérêt pour les feux de végétation. Il s'agit d'une source importante pour de nombreux composés gazeux et de particules d'aérosols (notamment des particules fines  $PM_{2.5}$ ) qui contribuent de manière significative au budget troposphérique sur le plan local, régional et même mondial avec des conséquences directes sur la qualité de l'air mais aussi sur le climat. Malgré son importance, les comparaisons entre observations et simulations par différents modèles mettent en évidence les fortes incertitudes sur notre connaissance des processus en jeu.

Nous présentons ici une description succincte des questions scientifiques qui font l'objet de cette thèse :

- **Quelle information apporte les observations disponibles, sur le contenu régional en aérosols ( $PM_{2.5}$  et  $PM_{10}$ ) et quelle est la variabilité spatiale et temporelle des particules dans la région d'étude ?**

La distribution temporelle et spatiale des aérosols en région Euro-Méditerranée pour la période couvrant les années de 2004 à 2010 sera étudiée. Les mesures de concentration de particules en surface d'AIRBASE permettront de quantifier la charge en aérosols à la surface. Ensuite, à l'aide des mesures de télédétection d'AERONET (en surface) et du capteur passif (MODIS) nous allons analyser la quantité d'aérosols intégrés sur toute la colonne atmosphérique. Cela nous permettra de quantifier les concentrations de fond pour les aérosols et d'identifier les zones et les périodes de valeurs extrêmes.

- **Quel est l'impact relatif des émissions d'aérosols minéraux et des feux de forêt sur le bilan de pollution particulaire et sur les dépassements du seuil de pollution ?**

La synergie des observations avec CHIMERE permettra d'analyser des événements spécifiques de feux de végétation et de poussières minérales observés pendant l'été 2007. Ainsi, l'importance relative de ces sources sporadiques sur le budget local et régional des aérosols sera examiné.

- **Quelle est la contribution de chaque espèce chimique (e.g. carbone suie, poussières minérales) ?**

A l'aide du modèle CHIMERE nous analyserons le budget de chaque espèce chimique dans toute la région d'étude et sa contribution sur le budget totale des aérosols.

- **Quel est le rôle du transport à longue distance sur le budget local et régional de pollution ?**

Nous étudierons le transport de panaches de pollution et leur évolution au cours du transport vers et depuis la région d'étude. L'analyse du transport se fonde sur la synergie du modèle avec les mesures du lidar CALIOP. Nous nous intéresserons aussi à l'analyse de son impact en surface en reposant sur de mesures de concentrations au sol d'AIRBASE.

## 1.4 Plan du manuscrit

Le plan de la thèse est organisé en 6 chapitres et 2 annexes. Le chapitre 1 est introductif et a permis de présenter dans les grandes lignes la problématique de la thèse. Nous introduisons la région d'étude Euro-Méditerranée et ses principales caractéristiques relatives aux aérosols. Pour finir, les objectifs techniques et scientifiques de cette étude ont été détaillés.

Le chapitre 2 présente tout d'abord, une classification des différents types d'aérosols qui seront étudiés dans la suite, en fonction des paramètres clés pour leur modélisation. Ensuite, nous présentons le modèle régional de chimie-transport, CHIMERE qui est utilisé

dans le cadre de cette thèse. Nous détaillons les processus physico-chimiques critiques pour la modélisation des aérosols et nous nous focalisons particulièrement sur les émissions des aérosols minéraux et des aérosols issus de feux de végétation qui concernent le cœur de ce travail.

Le chapitre 3 est consacré aux observations d'aérosols. Après une présentation des réseaux de mesures de concentration particulières près de la surface (AIRBASE, EMEP), nous rappelons les notions fondamentales du transfert radiatif essentielles pour les propriétés optiques des aérosols et nous introduisons les observations par télédétection (AERONET, A-TRAIN) utilisées dans cette thèse. Pour valider la cohérence entre les différents capteurs ayant des caractéristiques techniques différentes, nous proposons une comparaison inter-instruments pour la période couvrant les années de 2005 à 2010.

Le chapitre 4 concerne l'analyse de la variabilité inter-annuelle des aérosols, basée exclusivement aux mesures par les différents instruments considérés dans notre étude. La complémentarité des mesures nous permettra de quantifier la variabilité temporelle et spatiale des polluants particuliers ainsi que d'identifier les zones de valeurs extrêmes dans la région d'étude.

Le chapitre 5 présente le simulateur d'observables OPTSIM. Nous détaillons le principe de fonctionnement de cet outil pour la simulation des paramètres optiques des aérosols ainsi que du signal lidar. Ensuite, nous proposons une validation d'OPTSIM sur un cas académique et nous porterons une attention particulière sur les incertitudes dans le calcul des paramètres lidar. Pour finir, nous présentons une application du simulateur à un cas d'étude réel qui concerne deux événements de transport de poussières minérales observés pendant l'été 2007.

Le chapitre 6 s'articule autour des résultats de l'étude sur la quantification de l'impact relatif des poussières minérales et des feux de végétation sur la qualité de l'air dans la région Euro-Méditerranée. Ces résultats sont rédigés en anglais car constituent le manuscrit d'un article qui sera soumis dans la revue "Atmospheric Chemistry and Physics" (ACP).



## 2 Les aérosols atmosphériques : Principales caractéristiques et modélisation

Ce chapitre présente les différents types d'aérosols présents dans l'atmosphère et qui seront analysés à la fois par mesures et modélisation dans la suite de ce manuscrit. La section 2.1 présente tout d'abord les caractéristiques physico-chimiques et radiatives des différents aérosols. La section 2.2 présente ensuite la méthodologie de modélisation de ces aérosols à la fois pour leurs émissions, leur chimie et leur dépôt. Cette modélisation se place dans le cadre du modèle CHIMERE qui a été utilisé pour cette étude. La partie concernant les émissions de feux et d'aérosols minéraux est présentée plus en détails, afin de pouvoir analyser les résultats présentés dans les chapitres suivants sur le transport des panaches observés et modélisés sur la région Euro-Méditerranée.

### 2.1 Les différents types d'aérosols

La carte présentée sur la [Figure 2.1](#) montre une concentration moyenne d'aérosols en surface et sur le globe. Ces valeurs correspondent aux concentrations d'aérosols dont le diamètre médian est inférieur à  $2.5 \mu\text{m}$ , notés  $\text{PM}_{2.5}$ . Leur origine n'est pas spécifiée et le "mélange" présenté correspond à des aérosols de pollution (dits anthropiques), biogéniques ou naturels.

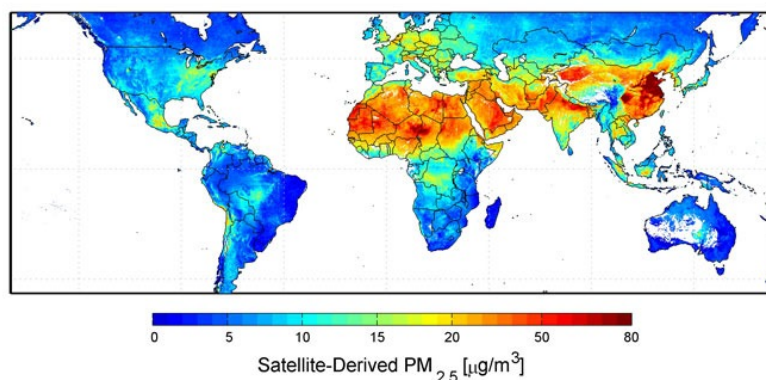


Figure 2.1 – *Concentration moyenne des aérosols de diamètre inférieur à  $2.5 \mu\text{m}$  sur le globe pour les années 2001- 2006 (van Donkelaar et al., 2010).*

Ces aérosols vont tous être comptabilisés dans le bilan de pollution mais ils ont des caractéristiques très différentes. Pour évaluer leur cycle de vie, il va falloir quantifier leurs émissions, leur transport et leur dépôt. Les aérosols peuvent être répertoriés suivant différents critères : leur origine, leur taille, leur composition chimique et leur impact radiatif. Ces différentes classifications sont présentées rapidement dans la suite.

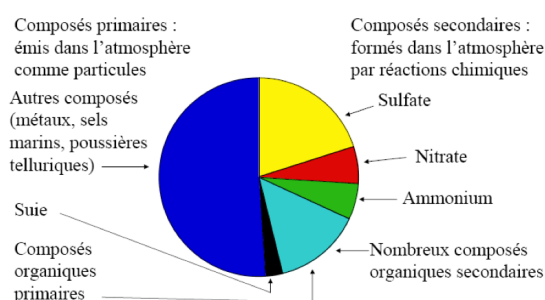


Figure 2.2 – Spéciation typique d'un aérosol continental

### 2.1.1 Origines des aérosols

On peut classer les aérosols en fonction de leurs sources et de leurs transformations : les **aérosols primaires** sont émis directement dans l'atmosphère et les **aérosols secondaires** sont le résultat de la conversion de gaz en particules.

Les aérosols primaires ont différentes sources qui sont :

- Les sources naturelles continentales : terrigènes (notamment par érosion éolienne), volcaniques, feux.
- Les sources marines : particules marines soulevées par le vent en surface des océans (comme les sels de mer),
- Les sources anthropiques, comme les combustions ou industries (cimenteries etc...)

La Figure 2.2 montre un exemple typique de composition d'un aérosol en fonction de sa source et de sa composition chimique. Si la part relative des composés primaires et secondaires est considérée, sur cet exemple, comme équivalente, on peut noter que la fraction secondaire sera dominée par les sulfates et organiques secondaires, avec une fraction moins importante de nitrates, ammonium et suies.

Type d'aérosol	Masse émise par an
<b>Aérosol primaires naturels</b>	
Poussières désertiques	1000-3000 Tg
Sels marins	1000-6000 Tg
Aérosols de feux de biomasse	20-35 Tg
Aérosols primaires biogéniques	1000 Tg
<b>Précurseurs d'aérosols secondaires naturels</b>	
DMS	20-40 Tg S
SO <sub>2</sub> volcanique	6-20 Tg S
Terpènes	40-400 Tg
<b>Aérosol primaires anthropiques</b>	
Poussières industrielles	40-130 Tg
Aérosols de feux de biomasse	50-90 Tg
Carbone suie	6-10 Tg
Carbone organique	20-30 Tg
<b>Précurseurs d'aérosols secondaires anthropiques</b>	
SO <sub>2</sub>	70-90 Tg S
Composés Organiques Volatiles (COV)	100-560 Tg C
NH <sub>3</sub>	20-50 Tg S

Tableau 2.1 – Masses émises des principaux types d'aérosols (d'après Boucher 2012)

Le Tableau 2.1 liste les aérosols atmosphériques primaires ou les précurseurs d'aérosols

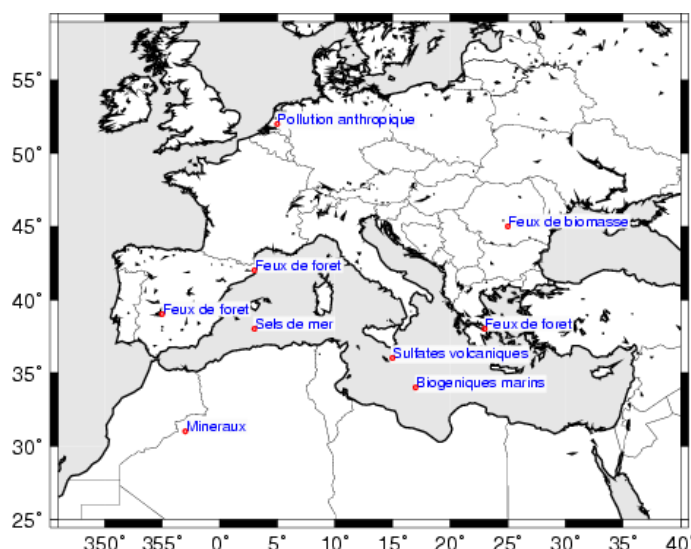


Figure 2.3 – Les différents types d’aérosols en fonction de leur source sur la région Euro-Méditerranée

secondaires en fonction de leur origine et donne des ordres de grandeurs de leur masse émise dans l’atmosphère. Nous notons que les particules primaires comme les poussières désertiques, les sels marins et les biogéniques dominent complètement la masse totale des aérosols (Forster et al., 2007). Les aérosols primaires anthropiques ont des émissions d’un ordre de grandeur plus petit que les primaires naturels, mais ils auront un impact important sur la qualité de l’air et sur la santé, étant émis dans les régions les plus peuplées.

Ce travail de thèse se focalise sur la région Euro-Méditerranée. La Figure 2.3 présente de manière simplifiée les différents types d’aérosols en fonction de leur source. On note que l’Afrique produit essentiellement des aérosols minéraux. Sur la côte nord de la Méditerranée, on note des régions de feux de forêt (Espagne, France, Italie, Grèce). Les aérosols sont dominés par la pollution anthropique en Europe de l’ouest et du nord, alors que de nombreux feux de biomasse produisent des aérosols en Europe du nord et à l’est. En Italie, l’Etna est une source de sulfate constante et la mer Méditerranée produit des aérosols marins sous forme de composés biogéniques et de sels de mer.

### 2.1.2 Forme et taille des aérosols

La forme des aérosols peut considérablement varier en fonction de leur origine et de leur cycle de vie (Figure 2.4). Alors que certains aérosols sont de forme sphérique, d’autres peuvent être sous forme de plaquettes ou d’agrégats de forme quelconque. De plus, la taille de ces particules peut varier dans une large gamme de quelques nanomètres à quelques dizaines de micromètres. Afin de pouvoir les classer par taille, mêmes s’ils ne sont pas sphériques, la notion de **diamètre aérodynamique** est utilisée : on considèrera le diamètre aérodynamique  $D_p$  d’une particule comme étant celui qu’aurait eu cette particule si elle avait été sphérique et en conservant ses principales propriétés de taille pour la sédimentation ainsi que pour son effet radiatif.

Pour un même type d’aérosol (comme une particule minérale), on va avoir, dès l’émission, différentes tailles émises dans l’atmosphère. Contrairement à des espèces gazeuses, moléculaires, les aérosols doivent donc être considérées en fonction de leur **distribution en taille**. L’étude de l’ensemble des populations d’aérosols montre que l’on peut distinguer



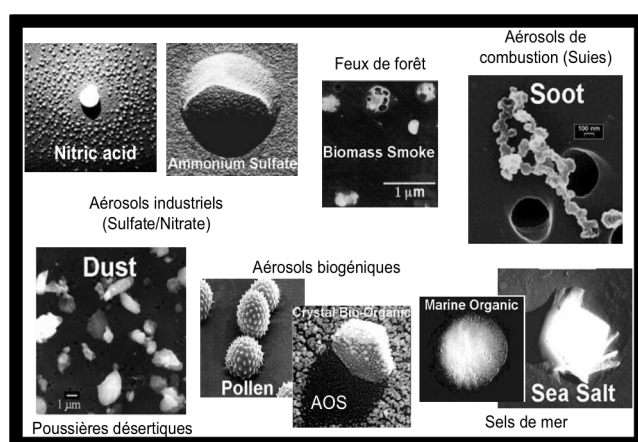


Figure 2.4 – Exemple des différentes formes d’aérosols atmosphériques

trois modes principaux (Boucher, 2012) :

- $0.01 \mu m < D_p < 0.1 \mu m$  : mode ultrafin
- $0.1 \mu m < D_p < 1 \mu m$  : mode d’accumulation
- $1 \mu m < D_p < 100 \mu m$  : mode grossier

En masse, par exemple, une unique particule de  $10 \mu m$  sera équivalente à 10 milliards de particules de  $0.01 \mu m$ . Par rapport à ces distributions typiques, et dans le cadre de cette étude de pollution atmosphérique, les aérosols mesurés et surveillés sont notés  $PM_{2.5}$  et  $PM_{10}$  : ils représentent l’ensemble de la distribution en masse jusqu’à un diamètre de 2.5 et  $10 \mu m$ , respectivement. A partir de ces trois modes, et comme cela a été montré par Whitby and Cantrell (1976), l’ensemble de la distribution des aérosols peut être représentée par la somme de trois distributions log-normales. L’intérêt de ces distributions logarithmiques est de pouvoir représenter la vaste gamme des aérosols tout en conservant des informations précieuses sur leur cycle de vie et leur impact potentiel. Ces distributions peuvent elles-mêmes être représentées en **nombre** (pour les aspects radiatifs et la santé) et en **masse** pour l’émission, le transport puis la surveillance de la qualité de l’air. Une représentation en taille typique est présentée sur la Figure 2.5.

Le cycle de vie des aérosols comportent trois grandes phases de formation, qui sont illustrées sur la Figure 2.6 et que l’on peut résumer comme suit :

- **La nucléation** : Ce processus décrit la formation d’une particule à partir d’espèces gazeuses.
- **La coagulation** : La coagulation décrit les premières interactions entre plusieurs particules. Des aérosols s’agglomèrent entre eux pour former de plus gros aérosols, sous forme de chaînes complexes. Ce processus est très dépendant de la concentration en aérosols dans un volume d’air.
- **La condensation** : En fonction de leur capacité à aggréger d’autres molécules, dont de l’eau, les aérosols vont grossir. Ce processus est directement dépendant des conditions atmosphériques.

En fonction de leur représentation en nombre ou en masse, ces phases de formation vont avoir un impact différent sur les aérosols. La nucléation va augmenter la concentration à la fois en masse et en nombre. La coagulation ne changera pas la masse mais va diminuer le nombre. La condensation gardera constant le nombre mais augmentera la masse.

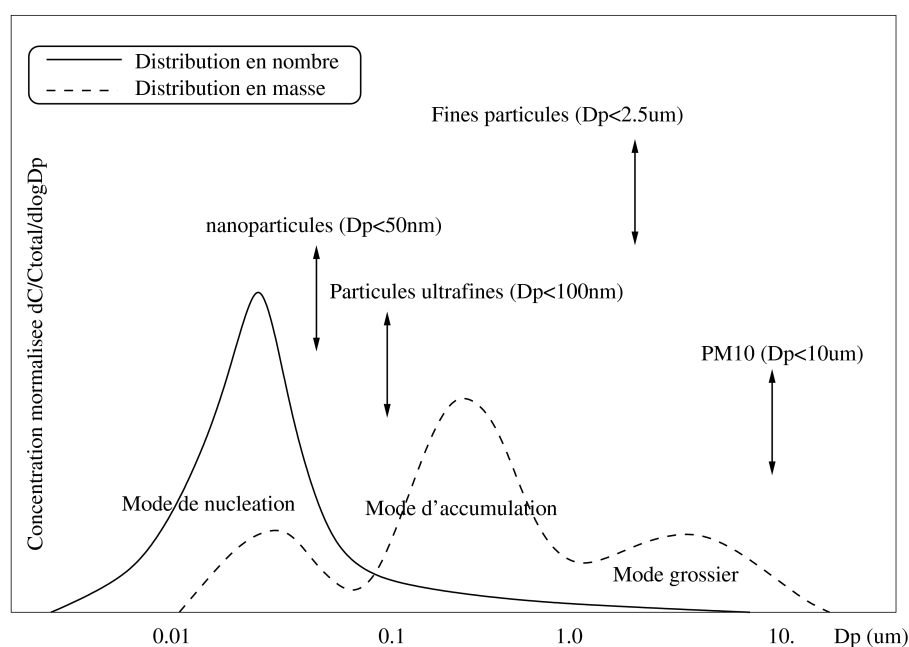


Figure 2.5 – Distributions en taille, en masse et en nombre, des aérosols.

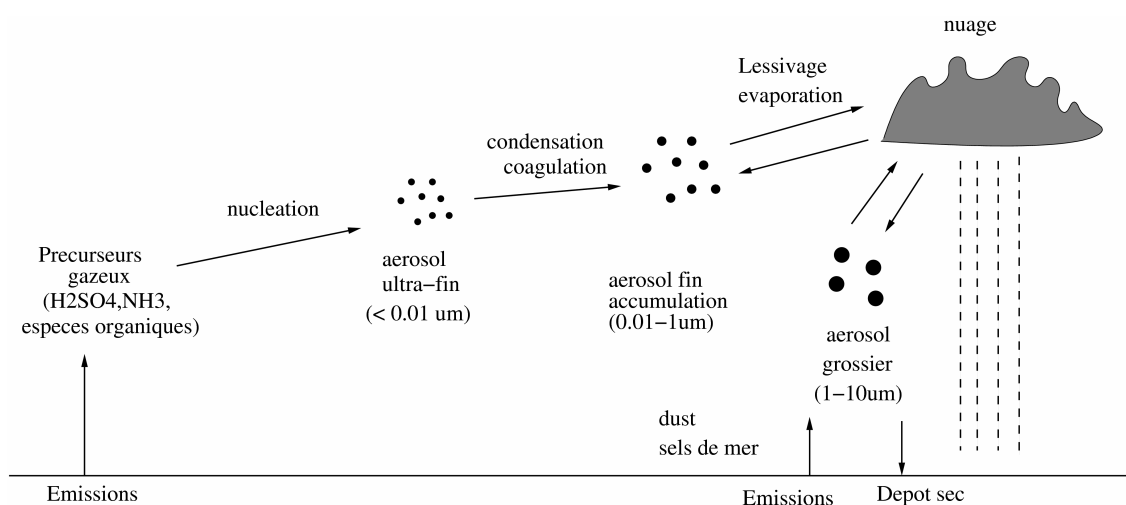


Figure 2.6 – Schéma synthétique du cycle de vie des aérosols

Le [Tableau 2.2](#) présente le temps caractéristique de résidence dans l'atmosphère des aérosols en fonction des processus de condensation, coagulation, dépôt et transport. Ces ordres de grandeurs sont présentés en fonction de l'origine des aérosols : urbain, rural, marin et dans la troposphère libre.

### 2.1.3 Composition chimique

Les aérosols qui seront analysés dans la région Méditerranée vont aussi montrer une grande diversité de composition chimique. Nous présentons ici les différentes compositions chimiques existantes.

	Urbain	Rural	Marin	Tropo. libre
Condensation	1s - 1h	30mn-1h	1-10h	2-20h
Coagulation ( $0.03 \mu m$ + autres)	1h-2 jours	1-5 jours	10-30 jours	1-5 jours
Dépôt $D_p=0.03 \mu m$	10h-10 jours	1 mois	10h-10 jours	-
Dépôt $D_p=0.3 \mu m$	1 mois	1 mois	1 mois	-
Transport	2-5 jours	1-2 semaines	1-2 semaines	3 jours-2 semaines

Tableau 2.2 – Temps caractéristique de résidence dans l'atmosphère des aérosols

- *Poussières minérales* : d'origine naturelle (aérosols désertiques) ou anthropique (e.g. cimenteries, agriculture), les particules minérales ont une composition chimique directement liée aux minéraux constituant le sol émetteur. Elles sont composées essentiellement de silicates et d'oxydes de silicium, d'aluminium et de fer. La mise en suspension dans l'atmosphère de ces particules est fonction du vent à la surface, du type de la surface, de l'humidité du sol et de leur taille. Elles appartiennent généralement à la fraction grossière des aérosols.
- *Sels marins* : Essentiellement composés de chlorure de sodium, les particules de sels marins sont produites par l'éclatement de bulles d'air formées par le déferlement de vagues sous l'action du vent. Cependant, ce phénomène donne lieu à la formation de particules via plusieurs mécanismes différents. Il en résulte que nous trouvons des particules qui couvrent une large gamme de taille (e.g. gouttes de film, gouttes de jet) de l'ordre de quelques dizaines de micromètres, jusqu'au millimètre mais la majorité de sels marins est répandue au mode grossier des aérosols.
- *Carbone suie (BC)* : Emis par des processus de combustion incomplète (e.g. carburants fossiles, feux de biomasse), les particules de suie émises sont composées de carbone amorphe, d'hydrocarbures partiellement oxydés et d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). Même si sa contribution en masse est faible, le carbone suie est très important puisqu'il est le composé atmosphérique le plus absorbant du rayonnement solaire (dans le visible).
- *Le carbone organique (OC)* : Provenant à la fois de sources primaires (e.g. combustion de biomasse, combustibles fossiles) et de sources secondaires liées à l'oxydation des composés organiques volatils (COV) dans l'atmosphère, le carbone organique est un mélange complexe de composés organiques.
- *Sulfates ( $SO_4^{2-}$ )* : Espèce inorganique secondaire produit principalement par l'oxydation du  $SO_2$  (anthropique ou volcanique) mais également par l'oxydation du DMS (dimethylsulfure) en milieu marin. L'aérosol sulfate a une taille proche de  $1 \mu m$ , ce qui favorise la diffusion du rayonnement solaire.
- *Nitrates ( $NO_3^-$ )* : Espèce inorganique secondaire formé à partir de  $HNO_3$  par dissolution dans des particules aqueuses ou en réagissant avec  $NH_3$  (en phase gazeuse) ou bien avec d'autres particules (e.g. sels marins, calcaire).
- *Ammonium ( $NH_4^+$ )* : Habituellement en forme de sulfate d'ammonium  $(NH_4)_2SO_4$  ou de nitrate d'ammonium  $NH_4NO_3$ . Le sulfate d'ammonium est obtenu par réaction de l'ammoniac  $NH_3$  avec l'acide sulfurique  $H_2SO_4$  tandis que les aérosols de nitrate d'ammonium se forment là où l'atmosphère est peu concentrée en sulfate mais fortement concentrée en ammoniac.

## 2.1.4 Propriétés radiatives

Cette section présente très rapidement les propriétés radiatives des aérosols qui seront étudiées dans la suite de cette thèse. Ces propriétés radiatives sont nombreuses et complexes. Nous ne présentons ici que les aspects concernant ce qui sera utilisé par la suite lors de notre analyse, c'est-à-dire la définition de l'**indice de réfraction**.

Cet indice de réfraction, noté  $\eta$ , caractérise la capacité des particules à diffuser/absorber le rayonnement solaire. Il s'exprime sous la forme d'un nombre complexe tel que :

$$\eta = n + ik \quad (2.1)$$

La partie réelle  $n$  représente la vitesse de propagation de l'onde électromagnétique dans un milieu donné et elle est reliée à la capacité de diffusion des particules. La partie imaginaire  $k$  représente la capacité d'absorption des particules. Cet indice de réfraction dépend de :

- La **longueur d'onde** ( $\lambda$ ) : La fréquence de la lumière ( $f$ ) ne change pas quand elle passe d'un milieu à un autre. La vitesse  $\nu$  de propagation, exprimée par  $\nu = \lambda f$ , exige par conséquent que la longueur d'onde change. La partie réelle de l'indice de réfraction peut être écrit en termes de longueur d'onde comme  $n = \lambda_o/\lambda$  où est  $\lambda_o$  la longueur d'onde de la lumière dans le vide et  $\lambda$  la longueur d'onde de la lumière dans le milieu.
- La **composition chimique** de l'aérosol et du **type de mélange** de particules. La composition chimique détermine la capacité d'extinction des particules. Le type de mélange peut faire varier cette capacité (Lesins et al., 2002) en modifiant la composition chimique de particules ainsi que des paramètres liés principalement à la taille des particules (Seinfeld and Pandis, 1997).
- L'**humidité relative** : Plus précisément, la partie réelle et imaginaire de l'indice de réfraction des aérosols hydrophiles ont tendance à diminuer car la partie réelle de l'indice de réfraction de l'eau ( $\sim 1.33$  dans le visible) est généralement inférieure à celui associé à des particules sèches et sa partie imaginaire est proche de zéro (Hale and Query, 1973). Il en résulte que la capacité de diffusion et d'absorption des aérosols va diminuer quand l'humidité relative augmente.

Le [Tableau 5.1](#) regroupe les valeurs de l'indice de réfraction pour les principaux composés des aérosols atmosphériques.

Espèce	Indice de réfraction	
	532 nm	1064 nm
Carbone organique	$1.63 - 2.32 \cdot 10^{-2} i$	$1.63 - 7.0 \cdot 10^{-4} i$
Carbone suie	$1.85 - 7.10 \cdot 10^{-1} i$	$1.85 - 7.10 \cdot 10^{-1} i$
Poussière minérale	$1.53 - 1.20 \cdot 10^{-3} i$	$1.53 - 7.74 \cdot 10^{-4} i$
Aérosol Organique Secondaire	$1.56 - 3.0 \cdot 10^{-3} i$	$1.56 - 3.0 \cdot 10^{-3} i$
Sulfate	$1.44 - 1.0 \cdot 10^{-8} i$	$1.42 - 1.64 \cdot 10^{-6} i$
Nitrate	$1.61 - 0i$	$1.59 - 1.8 \cdot 10^{-5} i$
Ammonium	$1.53 - 1.0 \cdot 10^{-7} i$	$1.51 - 2.35 \cdot 10^{-6} i$
Sel marins	$1.50 - 1.20 \cdot 10^{-8} i$	$1.47 - 1.97 \cdot 10^{-4} i$
Eau *	$1.33 - 1.9 \cdot 10^{-9} i$	$1.33 - 4.18 \cdot 10^{-6} i$

Tableau 2.3 – Liste des indices de réfraction en fonction de la longueur d'onde pour les principaux constituants chimiques des aérosols. Source : Rapport technique ADIENT/APPRAISE (<http://www.met.reading.ac.uk/adient/>). \*Base de données HI-TRAN, (Rothman et al., 2009).

Une grande partie des incertitudes qui entourent les propriétés optiques des aérosols et par conséquent leur effet radiatif concernent la détermination précise de l'indice de réfraction. Pour les espèces inorganiques, il peut être déterminé expérimentalement et donc leurs propriétés optiques sont relativement bien connues. De plus, ces composés atmosphériques ne contribuent quasiment pas à l'absorption du rayonnement solaire dans le visible.

L'indice de réfraction des aérosols organiques est plus incertain en raison d'une difficulté élevée à bien représenter leur composition chimique exacte en conditions atmosphériques réelles. Plus précisément, il est possible d'avoir des variations selon la région, la source d'origine, l'âge ou le type de mélange de particules. De plus, il y a souvent un manque d'informations sur la variation spectrale de l'indice de réfraction (Kirchstetter et al., 2004).

Les aérosols constitués de composants hydrophiles tels que les sel marins, les sulfates et les nitrates, sont très sensibles à l'humidité relative ( $RH$  pour "Relative Humidity" en anglais) de l'atmosphère ce qui peut faire varier leur taille et donc avoir un impact sur leur propriétés optiques.

La capacité de diffusion et d'absorption des aérosols va diminuer quand  $RH$  augmente. Plus précisément, en plus de l'augmentation de leur taille due à l'absorption de vapeur d'eau, les parties réelles et imaginaires de l'indice de réfraction des aérosols hydrophiles ont tendance à diminuer car la partie réelle de l'indice de réfraction de l'eau pure est inférieur à celui associé à des particules sèches et sa partie imaginaire est zéro. Cependant, l'extinction dépend fortement aussi de la taille et les variations de l'indice de réfraction avec la  $RH$  ne sont pas assez grandes pour contrebalancer la variation de la section efficace des particules en raison de l'augmentation de taille. Ainsi, la dépendance à la taille domine, ce qui conduit globalement à une augmentation de l'extinction.

Les variations de l'indice de réfraction en fonction de l'humidité relative peuvent être prises en compte à l'aide des relations d'Hänel qui relient le rayon "humide" d'une particule à l'humidité ambiante (Hänel, 1976) :

$$r_w = r(1 - RH)^{-\epsilon} \quad (2.2)$$

où  $r$  et  $r_w$  sont les rayons sec et humide et  $\epsilon$  un facteur dépendant du type d'aérosol. Il varie entre 0.25 pour la matière organique (Chazette and Lioussé, 2001) et 0.285 pour les particules solubles autres qu'organiques (Hänel, 1976).

## 2.2 Modélisation des aérosols avec CHIMERE

Cette section présente dans les grandes lignes le modèle de chimie-transport, puis, plus spécifiquement, la modélisation des aérosols qui seront analysés par la suite. On se focalisera donc plus particulièrement sur :

- Les émissions des aérosols minéraux (directe et par resuspension)
- Les émissions des produits de feux de forêt
- La chimie du soufre, des nitrates et des organiques secondaires.
- La représentation de la nucléation, de la coagulation, de la condensation et de l'absorption.

### 2.2.1 Principe général du modèle

CHIMERE est un modèle tri-dimensionnel eulérien de chimie-transport. A partir de champs météorologiques pré-calculés, il calcule l'évolution spatio-temporelle des concentrations d'un grand nombre de polluants gazeux et particulaires sur un maillage tri-

dimensionnel pour un domaine à aire limitée. Les résultats sont des champs de concentration 4D (dx,dy,dz,dt). La résolution spatiale peut être choisie dans une gamme de un kilomètre à une centaine de kilomètres et la résolution temporelle varie de quelques secondes (pour la chimie urbaine) à la dizaine de minutes (pour le transport d'aérosols minéraux non réactifs chimiquement). Les champs de concentration finalement stockés après un calcul sont à pas de temps horaire.

Le modèle résout l'équation d'évolution d'une concentration atmosphérique ( $c$ ) d'une espèce donnée à l'instant  $t$  et au point  $x$  :

$$\frac{\partial c(x,t)}{\partial t} = - \underbrace{\text{div}(Vc)}_{\text{advection}} + \underbrace{\text{div}\left(\rho K \nabla \frac{c}{\rho}\right)}_{\text{diffusion}} + \underbrace{\chi(c)}_{\text{chimie}} + S - P \quad (2.3)$$

où  $V$  est le vent,  $K$  le coefficient de diffusion turbulente,  $\chi$  la production/perte par réaction chimique de l'espèce et  $S$ ,  $P$  représentent respectivement les sources (émissions) et les puits (e.g. dépôt) de cette espèce chimique.

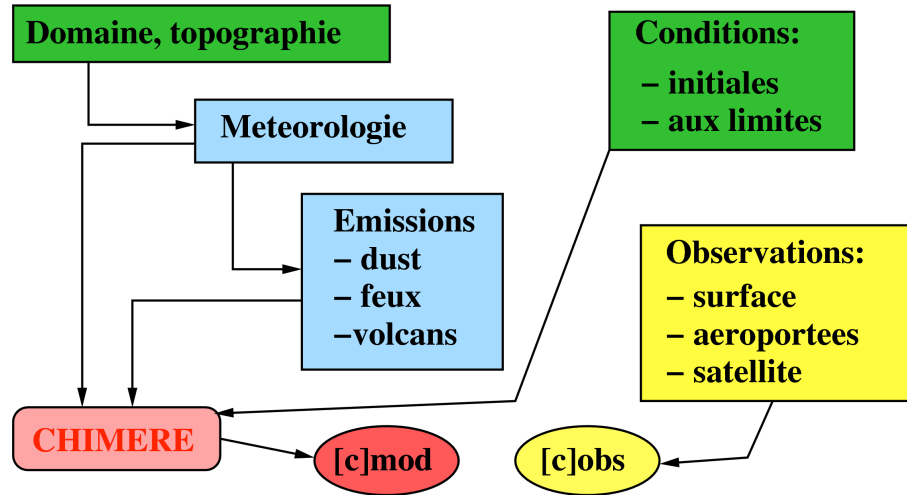


Figure 2.7 – Représentation schématique du principe d'un modèle de chimie-transport comme CHIMERE.

CHIMERE permet d'analyser des événements de pollution, d'étudier de processus particuliers liés à la pollution atmosphérique (e.g. transport), de faire des études de sensibilité et de tester des scénarios (à court et long terme) d'émissions. Actuellement, il est aussi utilisé de façon opérationnelle pour la prévision des principaux polluants gazeux (e.g. ozone, oxydes d'azote) et particulaires ( $PM_{10}$ ,  $PM_{2.5}$ ) sur des domaines allant de la région (e.g. Ile de France) au continental (e.g. Europe).

Un organigramme du principe général d'un modèle de chimie-transport est présenté sur la Figure 2.7. Une description complète du modèle CHIMERE est donnée dans Menut et al. (2013a) et le code et sa documentation sont en accès libre sur le site internet du modèle (<http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/>). La version utilisée dans tout ce travail de thèse est la version 2012.

Le modèle étant *off-line*, il lit des champs météorologiques et d'émissions pré-calculés avant de réaliser la chimie et le transport. Dans le cadre de cette étude, les simulations météorologiques ont été réalisées avec le modèle WRF. A partir des champs météorologiques (vent, pression, humidité et température), les paramètres turbulents (vitesse de rugosité

$u_*$ , coefficient de diffusion turbulente  $K_z$ , hauteur de la couche limite) sont diagnostiqués dans CHIMERE.

Les conditions initiales et aux limites sont données par des modèles globaux. Pour les espèces gazeuses, une climatologie calculée avec le modèle global MOZART est utilisée (Horowitz et al., 2003). Pour les aérosols, les conditions initiales et aux limites proviennent de LMDz-INCA (Textor et al., 2006) pour tous les aérosols sauf les minéraux, et de GOCART pour les minéraux, (Ginoux et al., 2001). Afin de calculer le dépôt sec et les émissions biogéniques, l'occupation des surfaces est calculée en utilisant la base de données GLCF (Global Land Cover Facility) à 1 km de résolution, (Hansen and Reed, 2000).

Les émissions anthropiques sont calculées à partir de la base de données EMEP (European Monitoring and Evaluation Programme). Les espèces considérées (e.g.  $COV$ ,  $NO_x$ ,  $CO$ ,  $SO_2$ ,  $NH_3$ ,  $OCAR$ ,  $BCAR$ ) sont fournies en masse annuelle par secteur d'activité (codes SNAP).

Les émissions biogéniques sont calculées avec le modèle MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature) pour les émissions de composés organiques volatiles (COV) et de monoxyde d'azote (NO) dues à la végétation. Les émissions de sels marins sont calculées en fonction de la vitesse du vent près de la surface d'après (Monahan, 1986).

A partir de ces champs météorologiques, de ces émissions et des conditions aux limites, le modèle intègre l'équation 2.3 en prenant en compte le transport, la chimie des gaz et particules et les dépôts secs et humides.

Le transport horizontal est calculé à partir du schéma de Van Leer, (Van Leer, 1979), connu pour être peu coûteux en temps de calcul mais aussi peu diffusif. Verticalement, les espèces chimiques peuvent être transportées sous l'effet du vent vertical ou diffusées par turbulence.

La chimie gazeuse est basée sur le mécanisme MELCHIOR, (Lattuat, 1997) qui décrit plus de 300 réactions de 80 espèces gazeuses. Ce mécanisme intègre les principaux processus de photochimie d'intérêt pour l'étude de la pollution atmosphérique. Les taux de photolyse sont précalculés à l'aide du modèle TUV ("Tropospheric Ultraviolet and Visible", (Madronich et al., 1998)). Une atténuation liée à l'épaisseur optique des nuages est diagnostiquée à partir des champs météorologiques et pondère ces taux de photolyse.

Le dépôt sec est calculé en suivant l'analogie des résistances proposée par Wesely (1989). Cette résistance dépend des paramètres météorologiques (e.g. turbulence atmosphérique), la composition chimique de l'espèce considérée, et des caractéristiques de la surface réceptrice (végétation). Le dépôt humide correspond à la captation par les hydrométéores (eau nuageuse, pluie, neige) d'espèces gazeuses et particulaires. Concernant le dépôt humide des gaz ( $HNO_3$ ,  $NH_3$ ,  $SO_2$  et  $H_2O_2$ ), les processus (réversibles en cas d'évaporation) pris en compte dans le modèle concernent leur absorption par les gouttes nuageuses et la dissolution des gaz sous les nuages par les gouttes de précipitation.

## 2.2.2 Représentation sectionnelle des aérosols

Le module d'aérosols de CHIMERE est décrit dans Bessagnet et al. (2004). Nous rappelons ici les grandes lignes des paramétrisations implantées dans le modèle.

A la fois par difficulté à mesurer dans la réalité et à représenter dans un modèle les formes possibles des aérosols, les **aérosols sont généralement considérés comme sphériques**. Les modèles de chimie-transport peuvent représenter les aérosols sous forme modale ou sectionnelle. Dans le cas de CHIMERE, la représentation sectionnelle est utilisée et la distribution en taille est découpée en différentes sections ou "bins". La Figure 2.8 montre un exemple de distribution en taille d'aérosols et le nombre de bins permettant de la repré-

senter. Les valeurs des 8 bins données sur cette figure correspondent aux valeurs utilisées dans toutes les simulations présentées dans la suite de ce manuscrit.

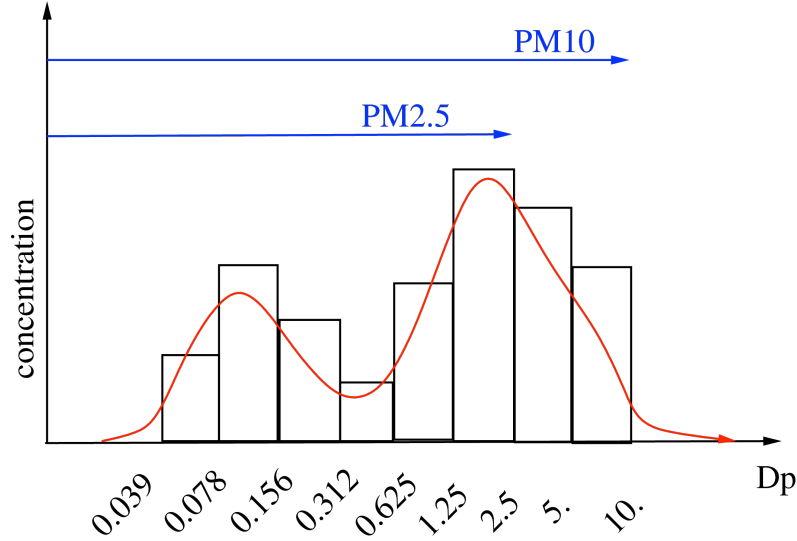


Figure 2.8 – Représentation schématisée de l'approche sectionnelle (en noir) et modale (en rouge) pour modéliser la distribution en taille des aérosols. Les huit sections correspondent aux bins définis pour CHIMERE.

La distribution massique  $q(x)$  d'une section donnée peut être exprimée en fonction de la taille de particules ( $x$ ) et de la masse totale ( $Q$ ) dans la section :

$$q(x) = \frac{dQ}{dx} \quad (2.4)$$

avec  $x$  le logarithme de la masse d'une particule ( $x = \ln m$ ). Par définition dans l'approche sectionnelle,  $q(x)$  est supposé constant dans chaque section. Il en résulte que la masse totale dans une section est la somme des masses des différents composés d'aérosols contenus dans la section.

Cette définition permet de couvrir toute la gamme de tailles à représenter et ainsi la masse totale de particules s'écrit :

$$Q_{tot} = \sum_{x_{min}}^{x_{max}} q(x) dx \quad (2.5)$$

### 2.2.3 Les émissions d'aérosols minéraux

Les émissions d'aérosols désertiques dépendent du type de terrain et des conditions météorologiques de surface. Le principe physique général d'un flux vertical de particules est basé sur le **double processus saltation/sandblasting** ou **flux horizontal/vertical**. Ces deux grandeurs vont être déterminées pour chaque maille : chacune de ces mailles pouvant représenter différents types de sols (donc avec différentes rugosités). Différentes paramétrisations existent pour chacun de ces processus et nous allons présenter ici uniquement la configuration du modèle qui a été utilisée pour cette étude.

La **saltation** est calculée en suivant le schéma de [Marticorena and Bergametti \(1995\)](#). Ce schéma permet d'estimer le flux de saltation à partir de données sur la surface (rugosités), sur la minéralogie (type de grain) et de données météorologiques. L'estimation



du déclenchement ou non de saltation est basée sur des calculs considérant les vitesses de rugosité,  $u_*$ . Pour un lieu donné, le vent moyen est ralenti par les obstacles et la surface, cette contrainte définissant une vitesse de rugosité  $u_*$ . A cette vitesse est reliée une hauteur de rugosité  $z_{0m}$ . A cette rugosité moyenne sur la maille se rajoute une rugosité à laquelle l'érosion sera plus sensible : cette rugosité dépendra de la distribution en taille des particules érodables et de la présence ou non d'éléments non-érodables (arbres, roches etc.). Finalement, l'érosion ne pourra se produire que si la vitesse de rugosité est supérieure à une vitesse seuil  $u_{*t}$ . Cette vitesse seuil  $u_{*t}$  dépend de trois facteurs : la longueur de rugosité moyenne de toute la surface  $z_{0m}$ , celle plus spécifique de la partie érodable de cette surface  $z_{0s}$ , ainsi que du diamètre de la particule constituant la surface,  $D_p$ . Diverses études en soufflerie ont montré que la longueur de rugosité "lisse" (smooth) pouvait être estimée au premier ordre telle que :

$$z_{0s} \approx \frac{D_p}{30} \quad (2.6)$$

avec  $D_p$  le diamètre médian en masse de la plus grosse distribution en taille de grain du sol. La dépendance de la vitesse de rugosité seuil à la taille de la particule n'est pas linéaire. Différentes méthodes existent pour réaliser ce calcul et CHIMERE en contient deux au choix : la paramétrisation de [Iversen and White \(1982\)](#) et la paramétrisation de [Shao and Lu \(2000\)](#). Cette dernière a été utilisée pour les simulations.

Le calcul de la rugosité seuil peut être réalisé aussi suivant différents schémas comme, par exemple dans [Iversen and White \(1982\)](#) ou [Shao and Lu \(2000\)](#). Dans le cadre de ce travail, on a utilisé le schéma de [Shao and Lu \(2000\)](#) qui est une formulation plus récente et qui a l'avantage d'être continue sur toute la distribution en taille.

$$u_{*t} = \sqrt{a_n \left( \frac{\rho_p g D_p}{\rho_{air}} + \frac{\gamma}{\rho_{air} D_p} \right)} \quad (2.7)$$

avec les constantes  $a_n = 0.0123$  et  $\gamma = 0.3 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$

Le flux de saltation intégré sur la verticale est estimé en utilisant la relation de [White \(1986\)](#) :

$$F_h(D_p) = \frac{K \rho_{air} u_*^3}{g} \left( 1 - \frac{u_{*t}}{c_{eff} u_*} \right) \left( 1 + \frac{u_{*t}}{c_{eff} u_*} \right)^2 \quad (2.8)$$

La densité de l'air est supposée constante,  $\rho_{air} = 0.00123 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$  ainsi que la densité de la particule,  $\rho_p$ .  $K$  représente la fraction érodable de la surface totale considérée. La valeur  $K=1$  est utilisée en général ([Alfaro and Gomes, 2001](#)). Le calcul complet du flux horizontal nécessite d'intégrer l'équation 2.8 sur toute la distribution des particules de  $D_p^{min}$  à  $D_p^{max}$ , tel que :

$$F_h = \int_{D_p^{min}}^{D_p^{max}} F_h(D_p) dS_{rel}(D_p) dD_p \quad (2.9)$$

avec  $D_p^{min}=0.0001 \text{ cm}$  et  $D_p^{max}=0.2 \text{ cm}$  afin de couvrir toute la gamme possible des tailles des particules rencontrées en zone Sahélienne (à adapter si d'autres types de sols doivent être décrits).

Le flux vertical d'aérosols minéraux ou **sandblasting** est calculé à partir de la paramétrisation de [Alfaro and Gomes \(2001\)](#). Basée sur le comportement de l'énergie cinétique de chaque taille de grain en fonction de la rugosité et de vitesse du vent, cette approche

calcule le flux vertical avec la granulométrie associée. Le calcul étant à seuil et numériquement instable, une version optimisée de Menut et al. (2005) est utilisée dans CHIMERE. Le principe du calcul est basé sur l'estimation d'énergie de cohésion existante entre les grains. Plus le vent est fort et donc la taille des agrégats en saltation, plus l'énergie cinétique est importante et va donc casser ces cohésions et permettre l'émission.

Le flux de "sandblasting" total est calculé selon :

$$F_{v,m,i} = \sum_{k=1}^{N_{class}} \alpha_i(D_{p,k}) F_h(D_{p,k}) \quad (2.10)$$

avec  $N_{class}$  le nombre d'intervalles discrétisant le domaine de distribution en taille des grains du sol, sur l'intervalle  $[D_p^{min} : D_p^{max}]$ . Finalement, les trois flux verticaux (un par mode) sont sommés et redistribués dans les 'bins' des aérosols avec une distribution log-normale. La discrétisation choisie s'étend de 0.01 à 40  $\mu m$ .

$$n(D_p) = \frac{N}{\sqrt{2\pi} D_p \ln \sigma_g} \exp \left( -\frac{(\ln D_p - \ln \overline{D_p})^2}{2 \ln^2 \sigma_g} \right) \quad (2.11)$$

Les bases de données de surface utilisées pour ces simulations sont issues d'une hybridation entre les données satellite ERS et les données d'occupation des surfaces de USGS, comme cela est présenté dans Menut et al. (2013b). La Figure 2.9 présente les valeurs de rugosité de surface prises en compte et estimées à partir des mesures ERS et, pour un vent académique de 12 m/s, les flux d'aérosols minéraux émis sur le domaine d'Afrique de l'Ouest.

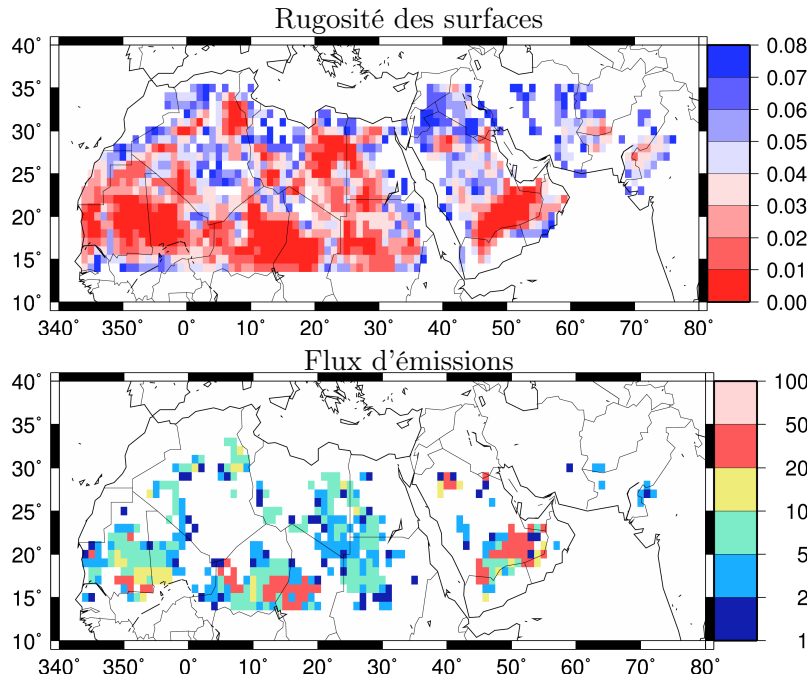


Figure 2.9 – Rugosité des surfaces issues des mesures ERS et cartes de flux d'émissions d'aérosols minéraux pour un vent uniforme de 12 m/s

### 2.2.4 Les émissions des feux de végétation

L'inventaire d'émissions développé au LMD dans le cadre du projet PRIMEQUAL APIFLAME a été utilisé dans ce travail de thèse. Ce dernier a permis une évaluation détaillée des émissions au cours du développement de la méthodologie grâce à l'analyse précise d'un cas d'étude (Chapitre 6).

Le calcul est basé sur la formulation de Seiler and Crutzen (1980). Pour chaque espèce modèle  $i$ , l'émission associée à un feu spécifique  $E_i$  (kg de l'espèce) est estimée en multipliant les surfaces brûlées d'un certain type de végétation  $A_{veg}$  ( $m^2$ ) par la quantité de combustible  $FL_{veg}$  (kg de matière sèche (DM)  $\cdot m^{-2}$ ) et par un facteur d'émission  $EF_{i,veg}$  ( $g \cdot (kg DM)^{-1}$ ) comme cela est présenté dans l'équation suivante :

$$E_i = \sum_{v=1}^{nveg} (A_{veg} \times FL_{veg} \times EF_{i,veg}) \quad (2.12)$$

Les surfaces brûlées sont estimées à partir des surfaces brûlées journalières estimées à partir des observations MODIS (produit MCD64) à une résolution de  $500 \times 500 m$  (Giglio et al., 2009), couplé aux observations SEVIRI/METEOSAT (Roberts and Wooster, 2008) afin d'estimer une variabilité diurne moyenne (maximum vers 14-15 h).

La Figure 2.10 montre la distribution moyenne annuelle des surfaces brûlées en Europe d'après les observations MODIS pour la période 2004-2010, ainsi que la fréquence d'observation d'un feu, sur une maille de  $20 km$ . Les feux les plus intenses (surfaces brûlées les plus étendues) sont localisés dans le Sud de l'Europe, et plus précisément sur le pourtour Méditerranéen, mais des feux plus petits sont également très fréquents en Europe de l'Est. La variabilité des surfaces brûlées mensuelles (Figure 2.11) montre par ailleurs un maximum très net d'activité en été, et une très forte variabilité interannuelle. On note que l'année 2007, qui est discutée en détail dans le Chapitre 6, correspond à une année particulièrement forte en Euro-Méditerranée.

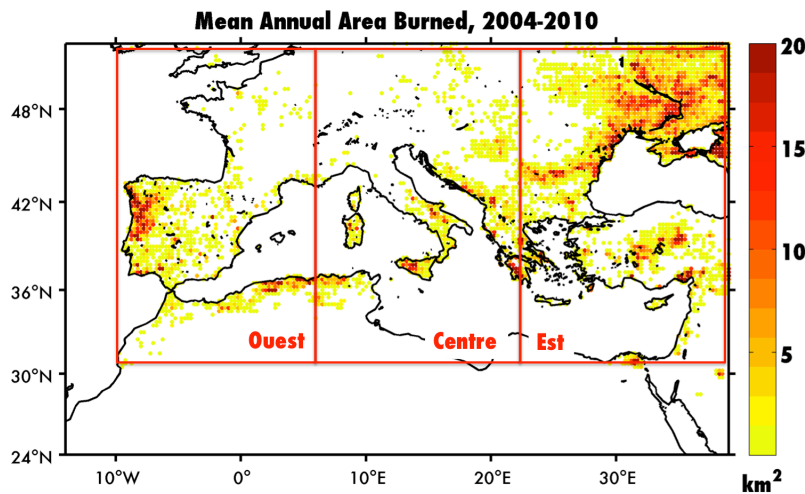


Figure 2.10 – Variabilité mensuelle de surfaces brûlées pour les trois sous-domaines en zone Euro-Méditerranée : ouest, centre et est.

En fonction de la localisation du feu, un type spécifique de végétation brûlée est affecté en utilisant la base de données de surface USGS (de résolution  $1 km$ ). La charge en combustible est estimée à partir des simulations du modèle de végétation ORCHIDEE (Krinner

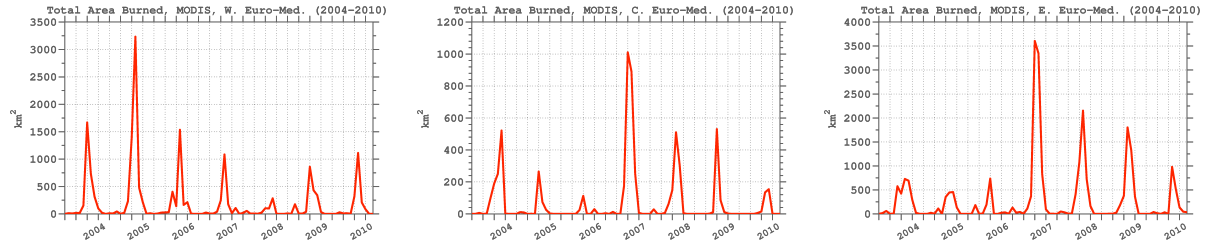


Figure 2.11 – Variabilité mensuelle de surfaces brûlées pour les trois sous-domaines en zone Euro-Méditerranée : ouest, centre et est.

et al., 2005) et un facteur d'efficacité dépendant de l'humidité des sols est appliqué afin de déduire la quantité susceptible de brûler pour chaque type de végétation ( $FL_{veg}$ ). Enfin, les émissions de carbone (ou DM, considérant qu'il y'a 45% de carbone comme cela est précisé dans van der Werf et al. (2010) sont convertie en émissions pour chaque espèce modèle de CHIMERE. Pour cela, les facteurs d'émissions définis par Akagi et al. (2011) sont utilisés. Une description complète de cette chaine algorithmique est donnée dans Turquety and al. (2013). A partir de ces flux d'émissions surfaciques estimés, les émissions doivent être injectées dans l'atmosphère en suivant le processus de pyroconvection (Freitas et al., 2007; Rio et al., 2010). La version du modèle ne prend pas en compte explicitement cette pyroconvection et, pour les simulations présentées ici, les feux sont injectés sous forme de profils constants dans toute la couche limite.

### 2.2.5 Les espèces chimiques particulières

Les particules prises en compte dans le modèle sont supposées en mélange interne, c'est-à-dire que toutes les particules d'une même section ont, à un instant donné, la même composition chimique. Actuellement, CHIMERE prend en compte des particules, constituées des espèces mentionnées dans le Tableau 5.1.

Nom	Espèce modèle	Origine
Carbone organique ( $OC$ )	$pOCAR$	Primaire
Carbone suie ( $BC$ )	$pBCAR$	Primaire
Poussiere	$pDUST$	Primaire
Particules primaires anthropiques	$pPPM$	Primaire
Sel marin	$pSALT$	Primaire
Ammonium ( $NO_4^+$ )	$pNH_3$	Primaire
Secondaires organiques	$pSOA$	Secondaire
Sulfate ( $SO_4^{2-}$ )	$pH_2SO_4$	Secondaire
Nitrate ( $NO_3^-$ )	$pHNO_3$	Secondaire
Eau	$pH_2O$	-

Tableau 2.4 – Liste des espèces prises en compte dans le module d'aérosols de CHIMERE.

Les espèces secondaires organiques ( $SOA$ ) regroupent les espèces d'origine anthropique ( $ASOA$ ) et biogénique ( $BSOA$ ). Les espèces carbone suie, carbone organique, et les poussières industrielles peuvent aussi être regroupées dans les espèces primaires d'origine anthropique ( $pPPM$ ). Enfin, les espèces modèle  $pNH_3$ ,  $pH_2SO_4$  et  $pHNO_3$  sont prises en compte sous toutes ses formes (e.g. ions, molécules, précipités).

Les espèces primaires  $pPPM$  et  $pNH_3$  nécessitent un inventaire d'émission alors que les sulfates et les nitrates sont formés par oxydation du  $SO_2$  et des  $NO_x$ . L'ammonium provient

de la fixation de l'ammoniaque gazeux dans les particules sous différentes formes (e.g. nitrate d'ammonium, sulfate d'ammonium). Les émissions des sels marins sont calculées dans le modèle en fonction du rayon de particules et du vent surfacique (Monahan, 1986).

### 2.2.6 Transformation des aérosols

Dans ce paragraphe, nous décrivons les processus micro-physiques pris en compte dans CHIMERE pour la modélisation de la dynamique des aérosols : la nucléation, la coagulation et la condensation/absorption.

La **nucléation** concerne la formation de nouvelles particules atmosphériques de taille nanométrique par la transformation de molécules en phase gazeuse vers une phase solide. Ce processus favorisé dans des conditions humides et froides (Kerminen et al., 1997) induit une forte augmentation du nombre de particules ultra-fines (diamètre entre 1 et 10 nm). En revanche l'augmentation de la masse est faible. Dans CHIMERE, une paramétrisation de la nucléation basée sur l'approche de Kulmala et al. (1998) est utilisée pour modéliser la nucléation du mélange  $H_2SO_4/H_2O$ . Le flux de masse d'acide sulfurique particulaire formé par nucléation est ajouté dans la première section de taille du modèle ( $D_p=40$  nm). Il est calculé à l'aide de la relation :

$$\left( \frac{dC_l^{H_2SO_4}}{dt} \right) = \frac{D^3 \rho J \pi}{6} \frac{X_{H_2SO_4}}{X_{H_2SO_4} + (1 - X_{H_2SO_4})^{\frac{18}{98}}} \quad (2.13)$$

où  $\rho$  est la masse volumique ( $1.5 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) typique des particules nucléées.  $J$  représente le taux de particules nucléées ( $\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ ), et  $X_{H_2SO_4}$  la fraction molaire de  $H_2SO_4$  dans le cluster nucléé. Ces deux dernières variables sont déterminées de manière empirique en fonction des paramètres météorologiques (e.g. humidité relative, température) et des concentrations d'acide sulfurique et d'eau. Une fois formées, les molécules de  $H_2SO_4$  peuvent soit être absorbées par d'autres particules déjà existantes soit former de petites particules par nucléation. Les processus de nucléation et d'absorption d'acide sulfurique dans les particules sont en compétition. L'absorption est favorisée dans des conditions très polluées où la quantité de matière en suspension est significative alors que la nucléation intervient que ponctuellement dans la journée dans des conditions peu polluées en contribuant à une forte augmentation du nombre de particules.

La **coagulation** correspond au mécanisme par lequel les particules s'agglomèrent pour former des particules plus grosses. Ce processus diminue donc le nombre de particules alors que la masse reste constante. De manière générale, la coagulation est principalement induite par l'agitation thermique des aérosols (coagulation brownienne) qui conduit à leur collision. Les aérosols peuvent également s'agglomérer par différents processus physicochimiques liés au flux turbulent, à la sédimentation ou encore à leur structure (i.e forces de Van der Waals). La coagulation est significative pour l'évolution des particules dont le diamètre est inférieur à 1  $\mu\text{m}$ . Pour des plus grosses particules, elle devient négligeable. En revanche, le processus de sédimentation devient important. Dans CHIMERE, ce processus est représenté par la paramétrisation de (Gelbard and Seinfeld, 1980). L'équation sectionnelle de coagulation multi-constituant est donnée par la relation :

$$\begin{aligned} \left( \frac{dC_l^k}{dt} \right) = & \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{l-1} \sum_{j=1}^{l-1} \left[ {}^{1a} \beta_{i,j,l} C_j^k C_i + {}^{1b} \beta_{i,j,l} C_i^k C_j \right] \\ & - \sum_{i=1}^{l-1} \left[ {}^{2a} \beta_{i,l} C_i C_l^k - {}^{2b} \beta_{i,l} C_l C_i^k \right] - \frac{1}{3} \left[ {}^3 \beta_{l,l} C_l^k C_l \right] - C_l^k \sum_{i=l+1}^L \left[ {}^4 \beta_{i,l} C_i \right] \end{aligned} \quad (2.14)$$

où  $C_i$  est la concentration d'un composé  $k$  dans la section  $l$  et  $L$  le nombre total de sections du modèle. Les coefficients sectionnels de coagulation  ${}^{1a}\beta, {}^{1b}\beta, {}^{2a}\beta, {}^{2b}\beta, {}^3\beta$  et  ${}^4\beta$  dépendent du diamètre des particules. Ces coefficients sont directement issus du calcul "off-line" des fréquences de collision des particules et dépendent de leur diamètre et des conditions météorologiques.

Les processus de fixation d'une espèce semi-volatile sur la matière particulaire, **absorption**, **adsorption** ou **condensation** sont traités de manière analogue dans le modèle. Le flux  $J$  ( $\mu g \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$ ) d'une espèce se fixant sur une particule est donné par la relation :

$$J = \frac{1}{\tau} (G - G^{eq}) \quad (2.15)$$

où  $\tau$  est un temps caractéristique dépendant des propriétés des particules et de l'espèce transférée,  $G$  représente la concentration de l'espèce en phase gazeuse et  $G^{eq}$  la concentration à l'équilibre de cette même espèce. En représentation sectionnelle, le transfert de masse (e.g. par condensation, absorption) dans une section de taille fixée résulte de deux mécanismes différents :

- Une partie des espèces semi-volatiles peut condenser sur des particules (ou être absorbée par les particules) de la section, ce qui conduit à un gain de masse pour cette section.
- Une partie des particules peut passer dans la section supérieure suite à leur grossissement (e.g. par condensation) conduisant ainsi à une perte de masse dans la section.

Pour les espèces semi-volatiles inorganiques (sulfates, nitrates, ammonium), la concentration  $G^{eq}$  est calculée à l'aide du modèle thermodynamique *ISORROPIA* (Nenes et al., 1998). Pour les espèces organiques secondaires,  $G^{eq}$  est calculé à partir d'un coefficient de partition en fonction de la température. Le calcul de l'équilibre nécessite de déterminer les coefficients d'activité des espèces en phase condensée. Dans CHIMERE, ces coefficients sont calculés selon la méthodologie développée par Pun et al. (2006); Bessagnet et al. (2009). La thermodynamique du mélange entre les espèces inorganiques et organiques étant actuellement mal comprise, les interactions entre ces espèces ne sont pas prises en compte. Le calcul de ce flux pour l'eau est traité de façon différente en différenciant l'équation ZSR (Stokes and Robinson, 1966.) permettant de trouver la quantité d'eau dans les particules.

## 2.3 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons tout d'abord présenté les caractéristiques principales des aérosols que ce soit en terme de forme et de distribution en taille, de sources d'émissions, de composition chimique et de processus de transformation.

Puis, le modèle de chimie-transport CHIMERE, utilisé pendant cette thèse pour calculer des champs de concentrations de particules en région Euro-Méditerranée a été présenté.

Après une présentation générale du modèle, un focus plus important a été consacré au calcul des émissions des aérosols minéraux, de feux de forêt. De plus, les paramétrisations implantées dans le modèle et décrivant les processus de nucléation, coagulation, et absorption/condensation ont été décrits en détail.

## 3 | Observation des aérosols atmosphériques

Ce chapitre est dédié à la description des données utilisées dans le cadre de cette thèse. Tout d'abord, les mesures des concentrations massiques en aérosols près de la surface des réseaux *AIRBASE* et *EMEP* sont présentées. Ensuite nous détaillons les données de télédétection utilisées et plus précisément les mesures au sol du réseau de photomètres *AERONET* et les observations de la constellation de satellites *A-TRAIN*. Dans la deuxième partie de ce chapitre nous présentons une comparaison inter-instruments effectuée pour vérifier la cohérence entre les différentes observations d'AOD utilisées par la suite. Plus spécifiquement, les AOD restituées à partir des observations satellitaires MODIS et PARASOL sont comparées aux mesures AERONET sur la région d'étude.

### 3.1 Mesures au sol

La base de données sur la qualité de l'air *AIRBASE* (<http://acm.eionet.europa.eu/databases/airbase/>), est une base publique de l'Agence Européenne pour l'Environnement (EEA en anglais). Elle contient des données de surveillance de qualité de l'air pour environ 35 pays à travers l'Europe. La base contient des données sur 140 polluants, parmi lesquelles des mesures au sol de concentration massique en particules (PM).

Pour plus de 6000 stations (Figure 3.1), elle fournit des données horaires mais aussi des données agrégées (données quotidiennes) et des statistiques, calculées à partir des données brutes. Les statistiques dans *AIRBASE* sont basées sur des valeurs horaires, journalières et des valeurs maximales journalières sur 8 heures. Pour l'agrégation des données horaires sur des périodes plus longues (e.g. données journalières) une disponibilité de données de 75% (minimum) est nécessaire pour calculer une valeur valide.

Toutes les données fournies incluent également des informations sur les réseaux, les stations et les configurations des mesures pour éviter les incertitudes liées aux différents caractéristiques de nombreux réseaux de surveillance. Les stations sont par ailleurs classées selon la zone (urbaine, suburbaine, rurale ou inconnu) et le type du site (circulation routière, industrie, de fond ou inconnu).

Les stations disponibles dans la région d'étude et pour la période étudiée ne contiennent pas d'information sur la spéciation des  $PM_{10}$  et  $PM_{2.5}$ . Nous utiliserons ici en complément les mesures de la base de données *EMEP* (pour "European Monitoring and Evaluation Programme"). Elle fournit les valeurs moyennes journalières de concentration des  $PM_{10}$  et  $PM_{2.5}$ , ainsi que des principaux composés des aérosols (e.g. sulfates, nitrates, ammonium).

Ce programme de coopération européenne de surveillance et d'évaluation du transport des polluants atmosphériques à longue distance en Europe, a été mis en place suite à la convention CEE-ONU sur la pollution atmosphérique. Son objectif principal est de fournir régulièrement des informations sur la pollution atmosphérique par les moyens d'inventaires d'émissions, de mesures des concentrations en polluants et de la modélisation. Le réseau de mesures se compose d'un grand nombre de stations (environ 130) réparties dans le domaine européen. Ces données publiques ainsi qu'une description détaillée de ces données sont disponibles sur le site internet <http://www.emep.int/>. Elles seront utilisées dans ce travail pour évaluer directement la performance du modèle de chimie-transport utilisé pour



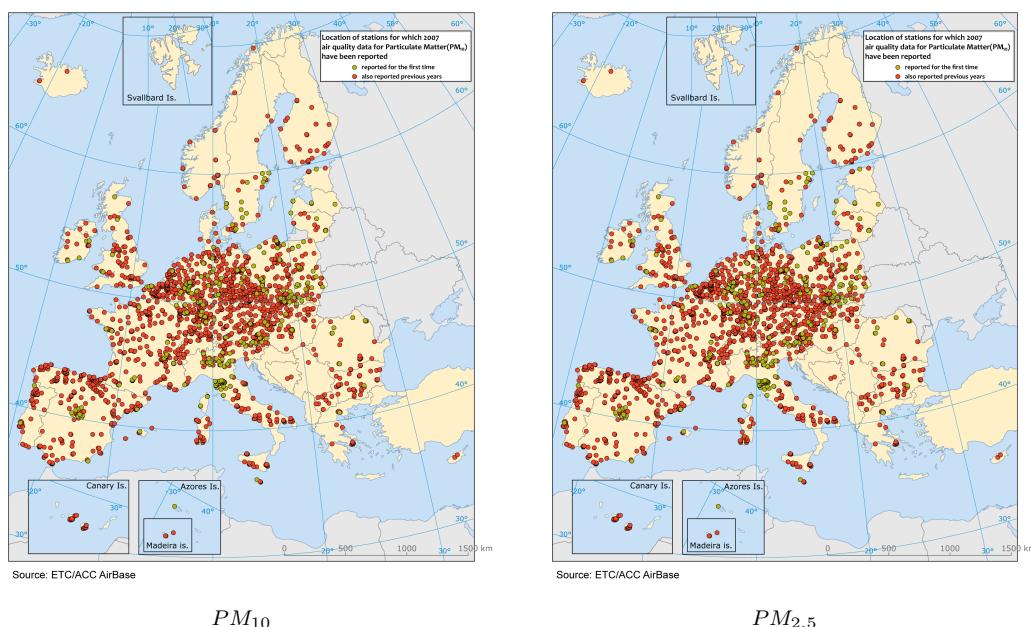


Figure 3.1 – Répartition des stations du réseau AIRBASE opérationnelles en 2007 pour  $PM_{10}$  et  $PM_{2.5}$ .

la simulation des champs de concentration des aérosols en surface.

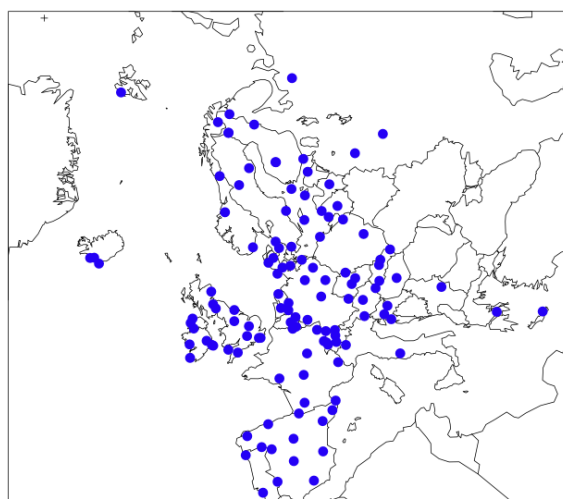


Figure 3.2 – Répartition des stations du programme EMEP opérationnelles pendant 2007 en Europe

Bien que les données fournies par les réseaux de surveillance de la qualité de l'air sont d'une qualité assurée, différents types de techniques ou d'instruments sont utilisés pour mesurer la concentration des particules en surface. Les sources potentielles d'incertitude sont liées notamment à l'étalonnage et la diversité des instruments utilisés selon le site (différences sur les critères de qualité des mesures), au prélèvement (e.g. conservation de masse de polluant sur les filtres, efficacité de piégeage du filtre) ou bien aux conditions

météorologiques (e.g. variation de la masse de particules en raison de l'humidité). De manière générale, l'incertitude associée aux mesures de concentration en aérosols, en fonction de différentes techniques de mesure (e.g. gravimétrie, TEOM), est de l'ordre de 15-25% (Putaud et al., 2010).

Une autre limitation dans l'exploitation de ces observations est la déclaration incomplète de données. Par rapport aux émissions de polluants gazeux, moins de pays fournissent des données sur les polluants particulaires. Pour une analyse plus représentative de l'ensemble de la région, il y a un besoin clair pour davantage de sites, en particulier dans la région méditerranéenne et dans l'Europe de l'est.

## 3.2 Mesures par télédétection

Les observations par télédétection apporte un bon complément aux observations sol pour l'analyse de la pollution particulaire. Les instruments se basent sur l'interaction entre le rayonnement et les particules pour mesurer à distance la signature optique des aérosols, et déduire ainsi des informations sur leur localisation, leur quantité et leur taille.

Afin de bien comprendre la nature de ces interactions et donc les observations utilisées, je commence cette section par un court rappel de l'impact radiatif des aérosols. Ensuite les principaux principes de la télédétection passive et active sont résumés, en détaillant tout particulièrement l'observation lidar pour laquelle j'ai développé un outil de comparaison entre observations et simulations de modèle spécifique (cf. Chapitre 5). Les principaux jeux de données qui ont été utilisés tout au long de la thèse sont également introduits.

### 3.2.1 Impact radiatif des aérosols

Les constituants de l'atmosphère (aérosols et molécules) interagissent avec le rayonnement électromagnétique lors de sa traversée de l'atmosphère. Le bilan énergétique englobe 3 processus : l'émission thermique de l'atmosphère, l'absorption et la diffusion par les constituants gazeux et particulaires de l'atmosphère. La contribution négative au bilan radiatif provient de l'extinction (absorption et diffusion) alors que la contribution positive provient à la fois de la diffusion et de l'émission thermique. Ce sont les signatures en diffusion ou absorption qui permettent de renseigner sur la composition et les propriétés des couches atmosphériques traversées.

### Théorie du transfert radiatif

La théorie du transfert radiatif permet de décrire les différents processus radiatifs affectant le rayonnement électromagnétique (Liou, 2002). Notamment, elle régit l'évolution de la luminance spectrale  $L_\lambda$  (en  $W m^{-2} \cdot sr^{-1} \cdot nm^{-1}$ ) c'est à dire du flux énergétique émis ou réfléchi par unité de surface, unité d'angle solide et pour une longueur d'onde donnée  $\lambda$ . La luminance constitue une grandeur fondamentale en télédétection. Toutes les équations développées ci-après s'entendent pour une longueur d'onde donnée. Pour des raisons de clarté nous omettons l'indice  $\lambda$ .

Selon l'équation du transfert radiatif, le bilan énergétique sur un élément cylindrique, de surface de base  $d\Sigma$  et de longueur  $dl$  dans la direction  $\vec{s}$  s'écrit :

$$dL(l, \vec{s}) = -\sigma_e [L(l, \vec{s}) - J(l, \vec{s})] \quad (3.1)$$

où  $L(l, \vec{s})$  est la perte énergétique du système due à l'atténuation (absorption et diffusion) du rayonnement par les constituants du milieu et  $J(l, \vec{s})$  représente les sources (gains)

énergétiques du système dues à l'émission thermique de l'atmosphère et la diffusion multiple des photons. La contribution de l'émission thermique est donnée par la loi de Planck qui définit la distribution de luminance énergétique monochromatique du rayonnement thermique du corps noir en fonction de la température.

Le terme  $\sigma_e$  (en  $m^{-1}$ ), appelé coefficient d'extinction, représente la capacité du milieu à atténuer (absorber et diffuser) le rayonnement. Il est proportionnel à la section efficace d'extinction  $s_e$  (en  $m^2$ ) des constituants (molécules et particules) du milieu et à la concentration du milieu en molécules et particules et dépend de la longueur d'onde. La section efficace d'extinction exprime la probabilité d'extinction du rayonnement électromagnétique par une molécule ou une particule à une longueur d'onde donnée.

Pour le cas simple d'un milieu purement absorbant (sans diffusion ni émission) l'équation 3.1 se réduit à (loi de Beer-Lambert) :

$$dL(l, \vec{s}) = -\sigma_e L(l, \vec{s}) \quad (3.2)$$

Pour les applications en télédétection, il est souvent pratique de négliger la courbure de la Terre en considérant que l'atmosphère est plane et que ces couches sont parallèles. Dans cette hypothèse dite plan-parallèle et selon l'équation 3.2, un rayonnement en propagation rectiligne selon la direction  $\vec{s}$  qui traverse une couche atmosphérique horizontale d'épaisseur  $dz$  purement absorbante, s'atténue exponentiellement en fonction de la distance parcourue. En effet, en intégrant  $dL/L$  (équation 3.2) entre deux positions données ( $z_1, z_2$ ) :

$$L(z_2) = L(z_1) \cdot \exp \left( - \underbrace{\int_{z_1}^{z_2} \sigma_e(z') dz'}_{\tau} \right) \quad (3.3)$$

La quantité  $\tau$  est appelée épaisseur optique du milieu. Les processus d'absorption et de diffusion sont statistiquement indépendantes et donc nous pouvons distinguer les deux contributions comme :

$$\sigma_e = \underbrace{\sigma_a}_{\text{absorption}} + \underbrace{\sigma_d}_{\text{diffusion}} \quad (3.4)$$

## Absorption

Dans le cas où le milieu est purement absorbant,  $\sigma_e$  est égal à  $\sigma_a$ . Pour une population d'aérosols de distribution en taille  $N(r)$ , ce coefficient est donné par la relation suivante :

$$\sigma_a(\lambda) = \int_0^\infty \pi r^2 Q_a(\eta, r, \lambda) \cdot N(r) dr \quad (3.5)$$

où  $Q_a$  est le facteur d'efficacité d'absorption. Pour une particule seule, ce facteur correspond au rapport entre la section efficace d'absorption et la section géométrique définie comme la projection d'une particule sur le plan perpendiculaire à la direction de propagation du rayonnement :

$$Q_a = \frac{s_a}{s_g} \quad (3.6)$$

Pour une particule sphérique de rayon  $r$ ,  $s_g$  est égal à  $\pi r^2$ .

Le terme  $\eta = n + ik$  de l'équation 3.5 appelé indice de réfraction exprime la dépendance des propriétés optiques des aérosols à leur composition chimique (cf. Chapitre 2) La partie

réelle  $n$  est reliée à la capacité de diffusion des particules, tandis que la partie imaginaire  $k$  caractérise la capacité d'absorption des particules.

Enfin, de manière analogue aux particules, la probabilité d'absorption du rayonnement électromagnétique (à une longueur d'onde donnée) par une molécule est décrite par sa section efficace d'absorption ( $s_a^m$ ). L'absorption moléculaire présente des variations spectrales très rapides. Pour s'affranchir de l'atténuation du rayonnement due à l'absorption moléculaire et calculer l'extinction due aux aérosols d'une couche atmosphérique, il est possible de se placer dans des "fenêtres" de transmission atmosphériques. Les fenêtres atmosphériques sont les parties du spectre électromagnétique pour lesquelles le rayonnement électromagnétique est peu ou pas absorbé (e.g. dans le visible ou dans l'infrarouge, entre 3 et 5  $\mu m$  et 8 et 14  $\mu m$  environ). Les capteurs de télédétection dédiés à l'observation de la Terre utilisent ces fenêtres pour observer les surfaces terrestres et océaniques.

## Diffusion

Nous pouvons distinguer la diffusion du rayonnement incident par les molécules d'air et par les particules qui s'y trouvent en suspension en deux catégories : la diffusion dite élastique qui provoque une modification de la direction de l'onde électromagnétique mais pas de sa fréquence (longueur d'onde) et la diffusion inélastique qui est accompagnée d'un échange d'énergie entre le rayonnement et le diffuseur et donc l'énergie du rayonnement diffusé est différente de l'énergie du rayonnement incident.

La redistribution angulaire du rayonnement diffusé est décrite par la fonction de phase de diffusion ( $P$ ). Plus précisément, cette grandeur représente la probabilité de diffusion d'un photon dans une direction donnée :

$$\int_{\omega} P(\omega) d\omega = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} P(\theta, \phi) \sin\theta d\theta d\phi = 4\pi \quad (3.7)$$

où  $\theta, \phi$  sont respectivement les angles zénithal et azimutal de diffusion. La fonction de phase dépend principalement de l'angle solaire et donc en un lieu donné, elle varie en fonction de l'heure, de la saison et des coordonnées géographiques.

En fonction de la taille des diffuseurs (molécules ou particules), nous pouvons distinguer 2 types de diffusion élastique : la diffusion Rayleigh et la diffusion de Mie. La taille d'un diffuseur est définie par le rapport de son périmètre sur la longueur d'onde ( $\lambda$ ) du rayonnement incident, appelé aussi paramètre de taille ( $\chi$ ) :

$$\chi = \frac{2\pi r}{\lambda} \quad (3.8)$$

où  $r$  est le rayon de la particule.

### Diffusion moléculaire

Lorsque  $\chi \ll 1$  c'est à dire que la longueur d'onde est beaucoup plus grande que la taille des diffuseurs (cas de molécules de gaz), la diffusion élastique des ondes électromagnétiques est appelée diffusion Rayleigh. Elle est caractérisée par une diffusion quasiment isotrope du rayonnement (Figure 3.3). La fonction de phase de la diffusion Rayleigh qui est pratiquement indépendante de la longueur d'onde, s'écrit :

$$p(\Theta) = \frac{3}{4}(1 + \cos^2\Theta) \quad (3.9)$$

avec  $\Theta$  l'angle entre la direction incidente et la direction après diffusion (angle de diffusion). La section efficace de diffusion Rayleigh varie inversement à la quatrième puissance

de la longueur d'onde ( $\propto \lambda^{-4}$ ).

Cette type de diffusion est donc à l'origine de la couleur bleue du ciel puisque le rayonnement bleu est plus diffusé que le rouge.

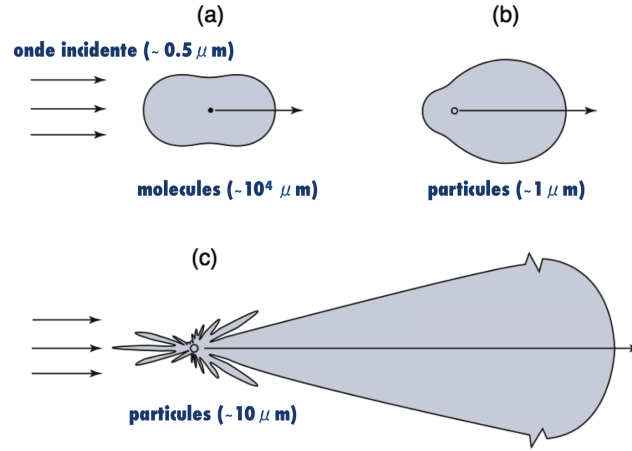


Figure 3.3 – Distribution angulaire de la diffusion Rayleigh (a) et de la diffusion Mie pour de petites (b) et de grosses (c) particules. L'onde incidente arrive par la gauche. Adapté de Liou (2002).

Les molécules diffusent le rayonnement aussi à d'autres longueurs d'onde spécifiques (de manière inélastique) car une faible partie du rayonnement, lors de sa diffusion, est consommée dans une transition moléculaire, vers un niveau supérieur (absorption) ou inférieur (émission). Ce type de diffusion (appelée aussi diffusion Raman) est exclusif aux molécules et se produit essentiellement dans les basses couches de l'atmosphère.

### Diffusion particulaire

Lorsque  $\chi$  est comparable ou supérieure à la longueur d'onde incidente, la diffusion élastique des ondes électromagnétiques est appelée diffusion de Mie (Mie, 1908; Van de Hulst, 1957). C'est le cas des particules atmosphériques qui nous intéressent dans le cadre de cette thèse. Pour le cas extrême de très grosses particules ( $\chi \gg 1$ ), la diffusion peut être modélisée à partir de la théorie de l'optique géométrique.

La théorie de Mie fait le lien entre les propriétés physiques et optiques des aérosols atmosphériques sphériques. Pour des particules non-sphériques, il existe des théories (e.g. T-matrix, FDTD) qui permettent le calcul de leurs propriétés optiques. Ces techniques sont coûteuses en temps de calcul, ce qui constitue leur principal désavantage.

La fonction de phase ( $P$ ) pour une particule sphérique ne dépend que de l'angle de diffusion ( $\Theta$ ). Elle est normalisée à une valeur de 2 et s'écrit alors comme :

$$\int_0^\pi P(\Theta) \sin\Theta \, d\Theta = 2$$

$$\text{ou } \int_{-1}^1 P(\mu) \, d\mu = 2 \text{ avec } \mu = \cos\Theta \quad (3.10)$$

La fonction de phase pour ce type de diffusion dépend du rapport entre la taille des particules et la longueur d'onde. À partir de cette grandeur, nous pouvons aussi définir le paramètre d'asymétrie  $g$  comme :

$$g = \frac{1}{2} \int_{-1}^1 \mu P(\mu) d\mu \quad (3.11)$$

Ce paramètre caractérise l'anisotropie de la diffusion. Lorsque toute l'énergie est diffusée vers l'avant,  $g$  vaut 1 alors que dans le cas contraire où toute l'énergie est diffusée vers l'arrière, il vaut -1. Pour une diffusion isotrope, il est égal à 0. La théorie de Mie indique que plus la valeur de  $\chi$  augmente, plus la diffusion devient importante vers l'avant (Figure 3.3).

Pour une onde incidente du rayonnement solaire, l'énergie diffusée par une particule peut être intégrée par rapport à la direction de diffusion, donnant la section efficace de diffusion ( $s_d$ ) d'une particule (en  $m^2$ ). Cette grandeur indique donc le degré d'interaction d'une particule avec le rayonnement. La section efficace de la diffusion de Mie ( $s_d$ ) varie inversement à la longueur d'onde ( $\propto \lambda^{-1}$ ). Généralement,  $s_d$  est plus petite que la section efficace géométrique ( $s_g$ ). Le facteur d'efficacité de diffusion (sans unité) est défini comme :

$$Q_d = \frac{s_d}{s_g} \quad (3.12)$$

Pour une population d'aérosols de distribution en taille  $N(r)$ , on définit le coefficient de diffusion  $\sigma_d$  (en  $m^{-1}$ ) de la façon suivante :

$$\sigma_d = \int_0^\infty \pi r^2 Q_d(\eta, r, \lambda) N(r) dr \quad (3.13)$$

Le comportement du facteur d'efficacité de diffusion est étroitement lié à la taille, la forme, la composition chimique et la longueur d'onde. La fonction de phase moyenne de la population des particules dont le rayon est compris entre  $r$  et  $r + dr$  est exprimée comme :

$$P(\mu) = \frac{1}{\sigma_d} \int_0^\infty \pi r^2 Q_d(\eta, r, \lambda) P(r, \mu) N(r) dr \quad (3.14)$$

### Extinction et propriétés optiques des aérosols

L'extinction du rayonnement incident traversant une couche de particules peut être exprimé par l'épaisseur optique d'extinction des aérosols ( $AOD$  pour Aerosol Optical Depth en anglais) noté  $\tau_{ext}$  (sans unité). L'AOD qui est dépendante de la longueur d'onde  $\lambda$  est définie comme :

$$\tau_{ext}(\lambda, z) = \int_{\Delta z} \sigma_{ext}(\lambda, z') dz' \quad (3.15)$$

où  $\Delta z$  signifie l'épaisseur de la couche des aérosols et  $\sigma_{ext}$  le coefficient d'extinction. Pour une population d'aérosols de distribution en taille  $N(r)$ ,  $\sigma_e$  est donné par la relation suivante :

$$\sigma_e(\lambda) = \int_0^\infty \pi r^2 Q_e(\eta, r, \lambda) \cdot N(r) dr \quad (3.16)$$

Nous notons que  $Q_e$  est la somme des facteurs d'efficacité d'absorption ( $Q_a$ ) et de diffusion ( $Q_d$ ), définis précédemment (cf. Section 3.2.1).

Le rapport entre  $Q_d$  et  $Q_e$  (sans unité), noté  $\omega$ , est appelé *albédo de diffusion simple* :

$$\omega = \frac{Q_d}{Q_e} \quad (3.17)$$

Il en résulte que la fraction du rayonnement diffusé par une particule est égal à  $\omega$ , tandis que sa fraction due à l'absorption correspond à  $1 - \omega$ . Ainsi, un albédo de diffusion

simple de zéro implique que toute extinction est due à l'absorption. A l'inverse, un albédo de diffusion simple qui vaut l'unité, implique que toute l'extinction du rayonnement est due à la diffusion.

A titre indicatif, la Figure 3.4 illustre le coefficient d'extinction de poussière minérale pour deux longueurs d'onde (532 et 1064 nm).

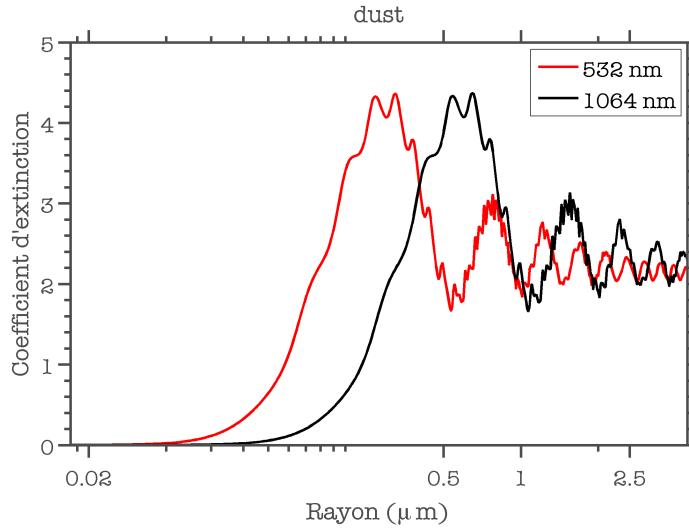


Figure 3.4 – Coefficient d'extinction de poussière minérale pour  $\lambda = 532$  et  $1064$  nm. L'indice de réfraction considéré est respectivement égal à  $1.53-1.20 \times 10^{-3}i$  et  $1.53-7.74 \times 10^{-4}i$ , suivant le rapport technique ADIENT/APPRAISE (<http://www.met.reading.ac.uk/adient/>).

La dépendance spectrale de l'épaisseur optique peut être exprimée par le coefficient d'Angström ( $\alpha$ ) selon la relation :

$$\alpha = \frac{\ln(\tau_{\lambda_1}/\tau_{\lambda_2})}{\ln(\lambda_1/\lambda_2)} \quad (3.18)$$

Le coefficient d'Angström est inversement lié à la taille moyenne de particules. De manière indicative, plus la dépendance spectrale de l'AOD est grande, plus le coefficient d'Angström est grand et plus les particules sont petites. Dans le visible et proche infra-rouge,  $\alpha$  est inférieur à 1 pour de grosses particules ( $r > 0.5 \mu m$ ) telles que les poussières désertiques ou les sels marins et supérieur à 2 pour de particules du mode fin ( $r < 0.5 \mu m$ ) telles que les aérosols issus de feux de végétation ou de la pollution urbaine (Schuster et al., 2006). Cependant, il n'y a pas une correspondance exacte entre taille et  $\alpha$  car la dépendance spectrale dépend aussi de l'indice de réfraction et donc de la composition chimique de l'aérosol.

### 3.2.2 La télédétection des aérosols

Une grande diversité de techniques de mesure des aérosols atmosphériques existe actuellement. De manière générale, nous pouvons distinguer les mesures de télédétection entre les mesures depuis le sol (e.g. AERONET) et à bord de plateformes spatiales (e.g. AQUA, PARASOL, CALIPSO). En fonction de l'origine du rayonnement mesuré, nous distinguons deux types de télédétection : la télédétection passive qui utilise des sources de rayonnement naturelles (e.g. soleil) et la télédétection active qui mesure l'écho d'un rayonnement produit par l'instrument lui-même (e.g. faisceau laser).



Nous présentons ici un aperçu des méthodes de télédétection ainsi qu'une description succincte des capteurs utilisés dans la suite de ce travail.

### 3.2.3 Télédétection passive

Dans le cas où la source du rayonnement mesuré est naturelle, nous parlons de télédétection passive. Il existe plusieurs techniques d'observations des aérosols en télédétection passive. Dans ce travail, nous nous intéressons spécifiquement aux mesures de l'extinction depuis le sol (e.g. photomètres solaires) et aux mesures de la diffusion depuis l'espace (e.g. spectromètres).

#### Photomètres solaires - AERONET

La photométrie depuis le sol est une technique de mesure de l'atténuation du rayonnement solaire par l'atmosphère. Elle se fonde sur deux méthodes différentes : les mesures utilisant une visée directe du Soleil tout au long de la journée dans différents canaux et les mesures de la distribution angulaire de luminance du ciel dans l'almucantar et dans le plan principal (Figure 3.5).

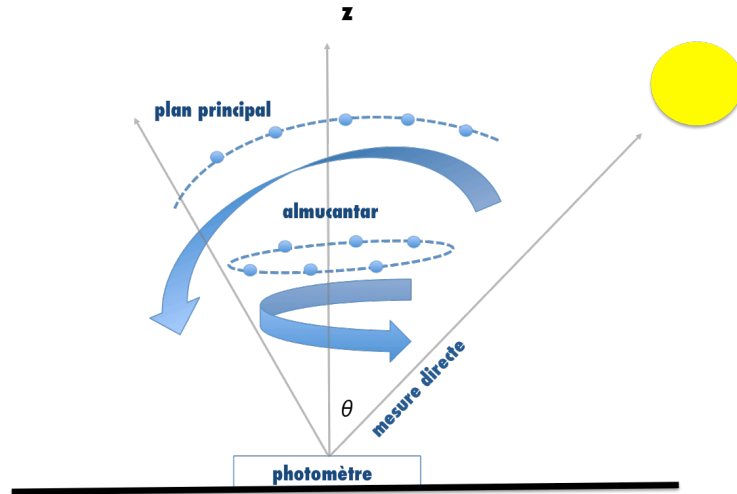


Figure 3.5 – Schématisation du principe de mesures photométriques directes, dans l'almucantar et dans le plan principal.

Les observations dites directes permettent de mesurer l'épaisseur optique des aérosols selon la loi de Beer-Lambert (équation 3.2). L'intensité du rayonnement solaire au sommet de l'atmosphère étant connue, la mesure de sa valeur à la surface terrestre permet de connaître l'épaisseur optique totale (molécules et particules) de l'atmosphère. Dans le cas d'une mesure au sol selon un angle zénithal  $\theta$ , l'épaisseur optique totale s'écrit :

$$\tau_{tot} = (\tau_m + \tau_a) / \cos\theta \quad (3.19)$$

où  $\tau_m$  est l'épaisseur optique moléculaire et  $\tau_a$  l'épaisseur optique des particules. Nous notons que cette expression n'est pas valable pour des angles d'incidence trop élevés. Généralement, ces mesures sont effectuées dans des canaux qui ne sont pas sensibles à l'absorption moléculaire, pour s'affranchir de la contribution des molécules. Le peu d'absorption



qui peut rester est corrigé à partir des profils verticaux typiques ou des données climatologiques.

Les mesures de la luminance du ciel permettent notamment de déterminer la distribution en taille des particules. Ces mesures sont ensuite inversées pour en déduire, entre autres paramètres, la distribution en volume des particules (entre  $0.05 \mu m$  et  $15 \mu m$ ), la fonction de phase, l'albédo de diffusion simple et l'indice de réfraction complexe des aérosols. Le principe de l'inversion consiste à restituer, à l'aide d'un code de transfert radiatif, la fonction de phase des aérosols en utilisant les informations obtenues par les mesures sous plusieurs angles et dans des différents canaux.

L'incertitude dans la restitution des propriétés des aérosols par la photométrie solaire, est principalement liée aux erreurs statistiques et systématiques qui correspondent à la sensibilité et l'étalonnage du détecteur ainsi que aux hypothèses considérées dans l'inversion de la mesure.

Dans cette étude, nous utilisons les mesures du réseau mondial de photomètres solaires au sol "AERosol RObotic NETwork" <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>. La Figure 3.6 présente la répartition des stations AERONET disponibles en Europe (année 2007 pour exemple). Les mesures photométriques d'AERONET donnent accès, en absence de nuages, à une grande variété de propriétés des aérosols tel que l'épaisseur optique spectrale ( $AOD$ ) et, par inversion (Dubovik and King, 2000), l'albédo de diffusion simple ( $\omega_o$ ), la distribution en volume ( $dV/d\log r$ ), la fonction de phase ( $P$ ) et le facteur d'asymétrie ( $g$ ).

Les mesures dites directes sont effectuées dans 8 bandes spectrales (340, 380, 440, 500, 670, 870, 940 et  $1020 nm$ ) en environ 10 secondes. Les bandes 440, 670, 870, et  $1020 nm$  sont consacrés à l'étude des aérosols. Le champ de vue des photomètres est  $1.2^\circ$ . Une séquence de trois mesures (prises par intervalle de 30 seconds) est réalisée pour obtenir un triplet d'observations par longueur d'onde. Ces mesures sont effectuées à intervalles de 15 minutes afin de permettre un contrôle sur la contamination nuageuse. La précision des mesures directes de l'épaisseur optique des aérosols à chaque longueur d'onde d'observation est estimée à  $\pm 0.01$  (Holben et al., 1998) pour  $\lambda > 440 nm$  et un instrument récemment étalonné.

En supplément des mesures directes, les photomètres mesurent aussi la luminance du ciel pour une large gamme d'angles de diffusion, en 4 bandes spectrales (440, 670, 870 and  $1020 nm$ ) dans l'almucantar (angles d'élévation solaire et de visée zénithal constants) jusqu'à 6 fois par jour. Egalement jusqu'à 9 mesures par jour sont réalisées dans le plan principal (pour un angle de visée zénithal constant et plusieurs angles de diffusion). Ces mesures sont ensuite inversées pour l'estimation de la distribution en volume de la fonction de phase, de l'albédo de diffusion simple et de l'indice de réfraction complexe des aérosols. L'inversion des mesures nécessite un certain nombre d'hypothèses notamment sur la forme de particules (e.g. sphères, sphéroïdes), la réflectance spectrale du sol, les effets de la diffusion multiple et de l'absorption moléculaire (Dubovik and King, 2000). L'incertitude dans ce type de mesures est plus difficile à déterminer. Pour un instrument récemment étalonné elle est estimée à 5%. La distribution en volume des aérosols est découpée en 22 différentes sections de taille (de  $0.05 \mu m$  à  $15 \mu m$ ). Les incertitudes dans la restitution de la distribution en volume dépendent de la section de taille. Elle sont estimées à moins de 10% au pic de la distribution alors qu'elles peuvent atteindre 35% aux extrémités de la gamme de taille des particules (Dubovik and King, 2000).

Notons qu'il existe plusieurs niveaux de traitement de données disponibles par AERONET et notamment les données de *Niveau 1* (données brutes), de *Niveau 1.5* (données filtrées par un masque-nuage) et de *Niveau 2* (données filtrées et de qualité optimale assurée). Dans le cadre de cette thèse, parmi les divers produits aérosols AERONET, nous

nous sommes particulièrement intéressés aux suivants :

- l'AOD à 500 et 870  $nm$
- l'AOD du mode fin et du gros mode (produit SDA, disponible à 500  $nm$ )
- le coefficient d'Angström ( $\alpha$ )
- La distribution en volume ( $dV/d\ln r$ )

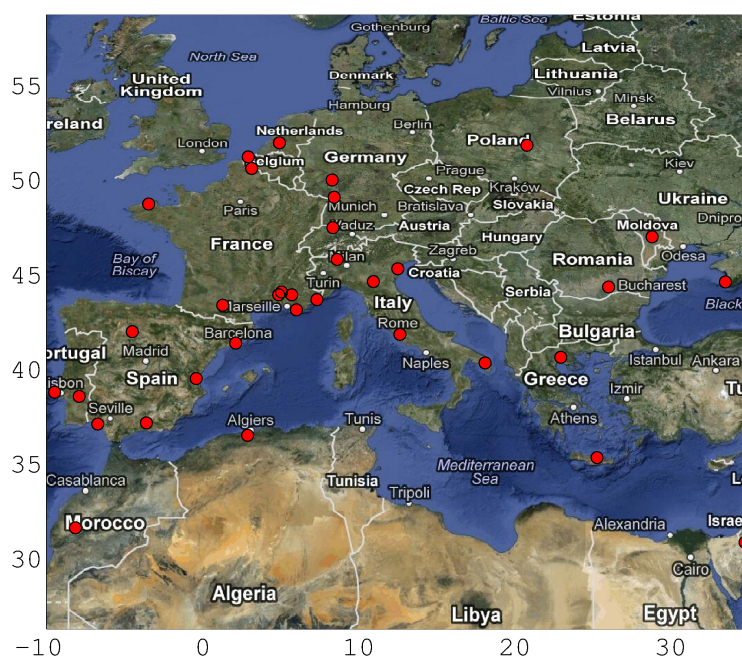


Figure 3.6 – Répartition des stations du réseau AERONET opérationnelles pendant 2007 en Europe.

### Observations satellites de la constellation A-TRAIN

L'A-train est une constellation de satellites (Figure 3.7) qui volent en formation sur une orbite héliosynchrone circulaire et quasi-polaire (inclinaison de  $98,2^\circ$ ) situés à 705  $km$  d'altitude et de période de rotation 98.5 minutes, espacés des intervalles allant de quelques secondes à quelques minutes. Ces satellites franchissent l'équateur avec quelques minutes d'écart aux alentours de 13h30, heure locale, d'où le surnom "Afternoon constellation" ou "A-Train". Autonomes mais complémentaires les uns des autres, les différents capteurs de l'A-Train s'intéressent au climat et à l'étude des interactions entre rayonnement, nuages, aérosols et cycle de l'eau. Par synergie, ils fournissent une quantité de données sur la constitution de l'atmosphère (e.g. nuages, aérosols) sans précédent. Ainsi, ils permettent de suivre les phénomènes de transport de pollution intercontinentaux, de remonter aux sources locales et régionales de pollution atmosphérique et ainsi de tester et d'améliorer les modèles de prévision numérique aussi bien du temps que de la pollution et du climat.

Parmi les satellites de l'A-TRAIN, nous utilisons dans cette étude les mesures dérivées des capteurs passifs MODIS à bord d'AQUA, POLDER à bord de PARASOL et du lidar CALIOP à bord de CALIPSO.

Les caractéristiques de ces instruments sont résumés au [Tableau 3.1](#) :

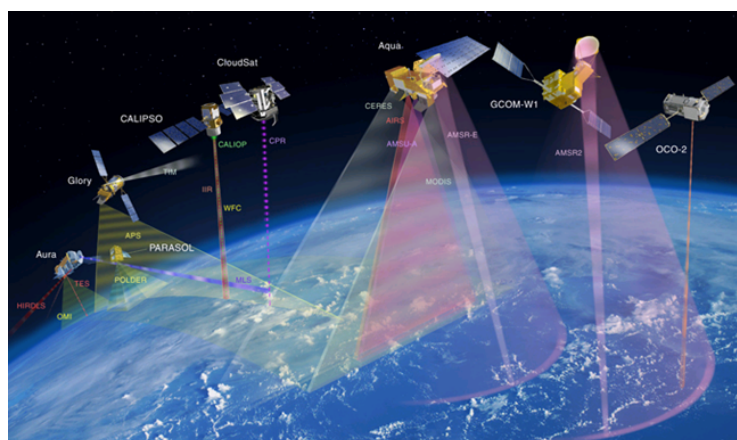


Figure 3.7 – La constellation de satellites A-Train : Aqua, Cloudsat, Calipso, Parosol et Aura.

Capteur	PARASOL	MODIS	CALIPSO
Période active	12/2004 - 12/2009 (quitté sa position au sein de l'A-TRAIN)	12/1999 (TERRA), 04/2002 (AQUA) - aujourd'hui	04/2006 - aujourd'hui
Altitude	705 km	705 km	705 km
FauchÖe	1600 km	2330 km	90 m
Heure de passage (équateur)	13h30 LT	10h30 LT (TERRA) 13h30 LT (AQUA)	13h30 LT
Canaux utilisables pour l'observation des aérosols	490, 670 et 865 nm	466, 553, 644, 855, 1243, 1632, et 2119	532, 1064 nm
Bandes spectrales polarisées	490, 670 et 865 nm	Aucune	532 nm
Résolution spatiale	5 x 6.5 km	250 x 250 m ou 500 x 500 m	333 m (horizontale)  30 m du sol à 8 km d'altitude puis 60 m de 8 à 20 km d'altitude (verticale)

Tableau 3.1 – Caractéristiques techniques de PARASOL, MODIS, CALIPSO.

Produit	Information	MODIS $\lambda = 550 \text{ nm}$	PARASOL $\lambda = 865 \text{ nm}$	CALIPSO $\lambda = 532, 1064 \text{ nm}$	AERONET $\lambda = 500, 870 \text{ nm}$
AOD	Quantité	✓	✓	✓	✓
Angström Exp.	Taille	✓	✓	✓	✓
Size Distribution	Taille				✓
Scattering Ratio	Quantité, Structure verticale			✓	
Color Ratio	Taille			✓	

Tableau 3.2 – Liste des produits satellitaires utilisés dans cette étude.

Nous présentons ci-après les principes généraux de restitution des propriétés des aérosols par les observations passives. Sous l'hypothèse de diffusion primaire (diffusion de premier ordre) et d'une surface lambertienne (diffusion isotrope) complètement absorbante, la luminance au sommet de l'atmosphère en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$ , s'écrit :

$$L(\theta) = \frac{\omega \tau P(\theta)}{4\pi\mu_\nu} f_\lambda \quad (\text{en } Wm^{-2}sr^{-1}) \quad (3.20)$$

où  $\omega$  est l'albédo de diffusion simple,  $P(\theta)$ , la fonction de phase de l'ensemble molécules et aérosols,  $\mu_\nu$  est le cosinus de l'angle zénithal et  $f_\lambda$  l'éclairement solaire au sommet de l'atmosphère. La réflectance de la surface est un paramètre critique pour la télédétection. Elle représente le rapport entre la luminance réfléchie par la surface et l'éclairement incident. Pour une télédétection spatiale, elle s'écrit :

$$\rho_a = \frac{\omega \tau P(\theta)}{4|\mu_s|\mu_\nu} \quad (3.21)$$

avec  $\mu_s$  le cosinus de l'angle azimutal. Le signal reçu par un capteur est composé de la contribution radiative des aérosols ( $L^a$ ), des molécules ( $L^m$ ) et de la surface terrestre ( $L^s$ ).

La restitution de paramètres physiques et optiques des aérosols à partir des mesures de luminance est basée sur l'utilisation de tableaux de valeurs pré-calculées ("Look Up table" ou LUT en anglais) de luminance. En utilisant un code de transfert radiatif et des modèles d'aérosols théoriques notamment pour la distribution en taille et l'indice de réfraction, le principe des algorithmes d'inversion consiste à chercher le modèle d'aérosol qui minimise l'écart entre les luminances observées et les luminances simulées pour différentes conditions atmosphériques et surfaces terrestres. Ces tableaux de luminances et les algorithmes d'inversion sont différentes pour chaque capteur.

Globalement, MODIS et PARASOL fournissent des informations précises sur la charge en aérosols présente dans l'atmosphère (Bréon et al., 2011). Une analyse détaillée des performances des deux capteurs pour la Euro-Méditerranée est présentée dans la [Section 3.3](#). Nous décrivons ci-après la méthodologie générale de restitution des paramètres spécifiques aux aérosols par les deux capteurs passifs utilisés dans cette étude.

### POLDER-3/PARASOL

Le capteur POLDER-3 (POLarization and Directionality of Earth Reflectances) à bord de PARASOL, est un radiomètre imageur à grand champ qui permet des mesures directionnelles de réflectance (polarisée ou non) du système Terre-Atmosphère. Nous notons que PARASOL est hors de l'A-TRAIN depuis décembre 2009.

PARASOL comporte une caméra numérique composée d'une matrice de détection CCD de dimensions 242 x 274 pixels, d'une optique télécentrique à grand champ de vue et d'une roue porte-filtres dont la rotation permet de réaliser de mesures aérosols dans 9 canaux (de 443 à 1020 nm) dont 3 sont polarisés (490, 670 et 865 nm).

Dans le visible et le proche infrarouge la lumière diffusée par les aérosols dépend fortement de la géométrie d'observation. L'une des caractéristiques importantes de POLDER-3 est de pouvoir réaliser des mesures directionnelles. L'acquisition d'une séquence d'images toutes les 20 secondes permet d'observer plusieurs fois consécutivement une cible sous jusqu'à 16 géométries de visée différentes,  $\pm 51^\circ$  le long et  $\pm 43^\circ$  perpendiculairement à la trace du satellite. Considérant l'altitude de la constellation (705 km), la taille des images est de 2100 x 1600 km<sup>2</sup> qui se traduit par une couverture mondiale tous les deux jours. La taille d'un pixel au nadir est de 5.3 x 6.2 km.

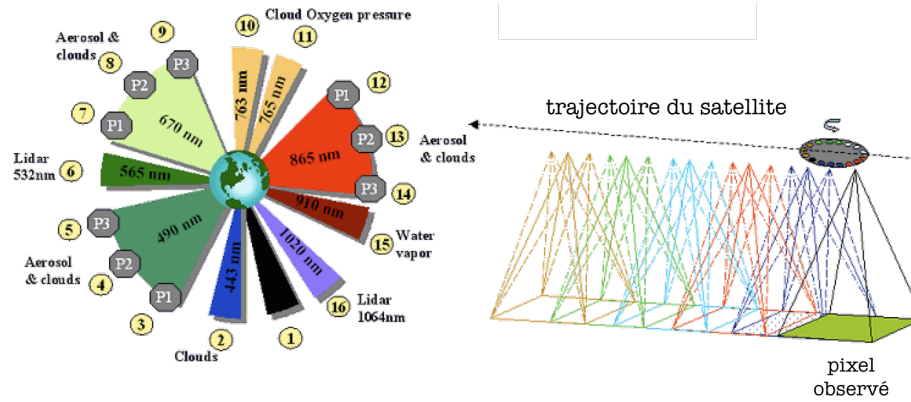


Figure 3.8 – Schématisation de la roue à filtres du radiomètre POLDER-3 en ordre successif des acquisitions. Lors du défilement du satellite, un pixel peut être observé plusieurs fois sous plusieurs directions.

L'autre caractéristique important de POLDER est sa capacité à mesurer l'état de polarisation de la lumière. Le rayonnement solaire, initialement non polarisé, se polarise après interaction avec les constituants atmosphériques et la surface terrestre. Néanmoins, la contribution de la surface à la polarisation de la lumière réfléchie est moins importante (Herman et al., 1997) que celle des particules (notamment de petite taille) et ainsi les mesures directionnelles polarisées du radiomètre POLDER permettent de mieux isoler la contribution des aérosols après correction pour la contribution moléculaire.

Il est important de souligner qu'à cause des différences sur la réflectance de la surface, les algorithmes de restitution des paramètres optiques sont différents au-dessus des continents et des océans (Tanré et al., 2011). La documentation complète des algorithmes et des produits spécifiques aux aérosols est disponible sur le site internet <http://www.icare.univ-lille1.fr/parasol/>. De plus, l'interprétation des mesures en termes de paramètres aérosols est seulement possible en ciel clair. Au préalable, les pixels contaminés par la présence de nuages sont éliminés grâce à l'application d'un masque nuage (Bréon and Colzy, 1999).

Les produits aérosols sont fournis, par inversion, à une résolution spatiale de  $18.5 \times 18.5 \text{ km}$  (1 "super-pixel" c'est à dire  $3 \times 3$  pixels) afin d'augmenter le rapport signal sur bruit. Il existe plusieurs niveaux de traitement de données PARASOL. Nous pouvons distinguer 3 types de données disponibles pour l'étude des aérosols :

- *Produits du niveau 1 (L1)* : Il s'agit des dérivées de données brutes de luminance mesurée. Le traitement des données L1 est constitué de l'étalonnage et du traitement radiométrique et géométrique.
- *Produits du niveau 2 (L2)* : Paramètres géophysiques issus à partir des données L1. Tous les paramètres sont fournis à une résolution d'environ  $18.5 \times 18.5 \text{ km}$  ( $1/6^\circ \times 1/6^\circ$ , i.e.  $3 \times 3$  pixels du niveau 1).
- *Produits du niveau 3 (L3)* : Composites statistiques mensuelles des produits L2. Tous les paramètres sont fournis à la même résolution que les produits L2.

Parmi les produits non directionnels L2 (après inversion) concernant les aérosols, nous utilisons principalement dans cette étude :



*Pour les aérosols au-dessus de la mer (OC) :*

- AOD à 670 et 865 nm
- AOD du petit mode à 670 et 865 nm
- Exposant d'Angström (670/865)
- Rayon effectif (petit mode, moyen, gros mode)

*Pour les aérosols au-dessus de la terre (L) :*

- AOD à 865 nm
- Exposant d'Angström (670/865)

L'incertitude dans les observations d'AOD total PARASOL est  $\pm 0.05 \times \text{AOD} \pm 0.05$  selon les comparaisons avec les mesures au sol du réseau AERONET (Tanré et al., 2011).

## MODIS/AQUA

MODIS (Moderate-Resolution Imaging Spectroradiometer), lancé par la NASA à bord du satellite TERRA en 1999, puis à bord du satellite AQUA en 2002, est destiné à l'amélioration de notre connaissance des processus terrestres, océaniques et atmosphériques.

Avec une trace de 2330 km, grâce à son large champ de vue ( $\pm 55^\circ$ ), il permet d'avoir une image complète de la Terre tous les 1 ou 2 jours (14 orbites par jour). La période de son orbite est 16 jours. Il dispose de 36 bandes spectrales (de 0,4  $\mu\text{m}$  à 14,4  $\mu\text{m}$ ) dont 7 (466, 553, 644, 855, 1243, 1632, et 2119 nm) dédiés à l'étude des aérosols avec une résolution spatiale de 250 m à 1 km au nadir (250 x 250 m à 644 nm et 855 nm et 500 x 500 m pour les 5 autres canaux).

Grace à sa haute résolution spectrale et spatiale, il permet la détection des nuages et fournit des produits précieux pour la détermination des caractéristiques des aérosols. Ces produits sont fournis à une résolution spatiale de 20 x 20 pixels de résolution 500 x 500 m (les pixels de 250 x 250 m sont dégradés à 500 x 500 m), c'est-à-dire une surface de 10 x 10 km. Les pixels contaminés par la présence des nuages sont éliminés après l'application d'un masque nuage (Ackerman et al., 1998).

La restitution des produits aérosols MODIS au-dessus des continents s'appuie sur l'exploitation des canaux à 470, 660 et 2120 nm sous la supposition que la bande spectrale à 2120 nm apporte des informations sur la réflectance de la surface ainsi que sur le mode grossier des aérosols (Levy et al., 2007). L'inversion simultanée des mesures à ces trois longueurs d'onde permet de déduire la réflectance de surface à 2120 nm, l'épaisseur optique des aérosols aux différentes longueurs d'onde ainsi que des paramètres qui caractérisent la taille des aérosols. La réflectance de surface est estimée en fonction de la réflectance à 2120 nm mais également de l'angle de diffusion et d'un indice de végétation calculé à partir des réflectances à 1240 and 2120 nm à l'aide de tableaux de valeurs pré-calculées.

L'algorithme d'inversion est limité à des pixels sombres (e.g. végétation). Dans le cas d'une surface très réfléchissante (e.g. régions désertiques) où les hypothèses au sujet de la réflectance de la surface ne tiennent plus, il est considéré non-valide.

Au-dessus des océans, l'algorithme d'inversion utilisé est différent (Remer et al., 2005). Les réflectances mesurées au sommet de l'atmosphère à 6 longueurs d'onde (550, 660, 870, 1024, 1064 and 2130 nm) sont comparées avec des réflectances pré-calculées (Look Up Tables) pour une large gamme d'angles, de distributions en taille et d'épaisseurs optiques.

Parmi les produits de niveau 2 (paramètres physiques après inversion), concernant les aérosols (collection 051), nous utilisons principalement dans cette étude les produits validés :

- Optical Depth Land And Ocean, à 550 nm, Ocean ("best") et Terre ("corrected") de qualité optimale (QA Confidence Flag = 3)
- AOT ("Corrected Optical Depth Land") à 470, 550 et 660 nm correspondant à la totalité de la distribution en taille des particules
- Effective Optical Depth Average Ocean
- Effective Radius Ocean
- Angström Exponent Ocean, calculé entre 470 et 670 nm

L'incertitude dans les observations d'AOD MODIS est  $\pm 0.03 \times \text{AOT} \pm 0.05$  au-dessus des océans et  $\pm 0.05 \times \text{AOT} \pm 0.15$  au-dessus des terres selon les comparaisons avec les mesures au sol du réseau AERONET (Remer et al., 2005).

### 3.2.4 Télédétection active

L'avantage du lidar CALIOP et de la télédétection active en général, par rapport aux capteurs passifs (e.g. MODIS, POLDER-3) est qu'il permet d'accéder à la distribution verticale des aérosols et des nuages jusqu'à 40 km d'altitude. Ainsi, aucune hypothèse sur la distribution verticale des aérosols ou sur la réflectance de la surface n'est nécessaire pour la détermination du type des aérosols (Omar and al, 2009).

La technique lidar est basée sur l'émission des impulsions laser dans l'atmosphère pour mesurer l'intensité du rayonnement rétrodiffusé (à la même longueur d'onde) par les constituants atmosphériques tels que les particules, les molécules et les nuages. De manière analogue aux capteurs passifs, il est possible d'utiliser un lidar au sol (e.g. réseau EARLINET) visant vers l'atmosphère ou à bord d'une plateforme spatiale (e.g. CALIOP à bord de CALIPSO).

L'intensité  $P(\lambda, z)$  du signal reçu (en  $J \cdot s^{-1}$  ou  $W$ ), est définie par l'équation suivante :

$$P(\lambda, z) = C_o(\lambda) \frac{Ak}{z^2} \cdot \underbrace{\beta(z, \lambda) \cdot e^{-2\tau(\lambda)}}_{\beta'} \quad (3.22)$$

où  $C_o(\lambda)$  est l'intensité (en  $W$ ) initiale émise par le laser à la longueur d'onde  $\lambda$ ,  $k$  une constante dépendante des caractéristiques optiques et électroniques du capteur et  $A$  l'aire du récepteur (en  $m^2$ ). Le coefficient  $\beta(\lambda, z)$  représente la rétrodiffusion (en  $m^{-1}sr^{-1}$ ) à l'altitude  $z$  et  $\tau$  l'extinction (sans unité). Le coefficient de rétrodiffusion atténuée totale (particulaire et moléculaire),  $\beta'$ , représente le rayonnement rétrodiffusé atténué par son trajet dans l'atmosphère. Il peut être modélisé comme :

$$\beta'(z, \lambda) = \left[ \frac{\sigma_d^m(z, \lambda)}{S_m(z, \lambda)} + \frac{\sigma_d^p(z, \lambda)}{S_p(z, \lambda)} \right] \cdot \exp \left( -2 \left[ \int_z^{TOA} \sigma_e^m(z', \lambda) dz' + \eta^*(z)' \int_z^{TOA} \sigma_e^p(z', \lambda) dz' \right] \right) \quad (3.23)$$

Il faut noter que pour le cas d'un lidar spatial, l'intégration commence par le sommet de l'atmosphère alors que dans le cas contraire (lidar au sol), elle se fait à partir de la surface ( $z = 0$ ). Le terme  $\eta^*(z)$  représente la diffusion multiple entre l'émetteur et le point d'observation et  $z$  représente la distance entre l'émetteur et le point étudié (couche diffusante). Le coefficient de rétrodiffusion atténuée moléculaire  $\beta'_m(z, \lambda)$ , est exprimée comme :

$$\beta'_m(z, \lambda) = \frac{\sigma_d^m(z, \lambda)}{S_m(z, \lambda)} \cdot \exp\left(-2 \int_z^{TOA} \sigma_e^m(z', \lambda) dz'\right) \quad (3.24)$$

De manière analogue, les coefficients  $\sigma_{d/e}^p(z, \lambda)$  et  $\sigma_{d/e}^m(z, \lambda)$  (en  $km^{-1}$ ) représentent l'extinction/diffusion particulaire et moléculaire.  $S_m$  (respectivement  $S_p$ ) est le rapport moléculaire (respectivement particulaire) entre extinction et rétrodiffusion (en  $sr$ ). La contribution moléculaire ( $\sigma_m$  and  $S_m$ ) est calculée théoriquement. Pour des conditions atmosphériques connues (pression  $P$  et température  $T$ ), ces coefficients sont calculés comme :

$$\sigma_d^m = \frac{P}{k_B T} \cdot \frac{s_d^m(\pi)}{S_m} \quad (3.25)$$

$$S_m = \frac{8\pi}{3} \cdot k_{bw}(\lambda) \quad (3.26)$$

où la dispersion de l'indice de réfraction et le facteur de dépolarisation (ou "King factor" en anglais) de l'air sont quantifiés par  $k_{bw}(\lambda)$ . Le terme  $k_B$  représente la constante de Boltzmann. Enfin, la section efficace moléculaire  $s_m^d$  (en  $m^2/sr$ ) est donnée par :

$$s_d^m = 4.5102 \cdot 10^{-31} \cdot \left(\frac{\lambda}{0.55}\right)^{-4.025 - 0.05627 \cdot \frac{\lambda}{550} - 1.647} \quad (3.27)$$

Le coefficient d'extinction moléculaire  $\sigma_m^e$  s'écrit en fonction de  $\sigma_d^m$  :

$$\sigma_e^m = \frac{8\pi}{3} \cdot \sigma_d^m \quad (3.28)$$

La contribution de particules ( $\sigma_p$  and  $S_p$ ) peut être exprimée en fonction de la concentration en nombre de particules et de l'efficacité d'extinction/diffusion ( $Q_{e/d}$ ) et ainsi de l'indice de réfraction et de la longueur d'onde  $\lambda$  (cf. [équation 3.16](#)).

Afin de mettre en évidence la contribution de particules au signal, on calcule le rapport de rétrodiffusion atténuée  $R'(z, \lambda)$ . Ce rapport s'écrit ([Winker et al., 2009](#)) :

$$R'(z, \lambda) = \frac{\beta'(z, \lambda)}{\beta'_m(z, \lambda)} \quad (3.29)$$

Par définition  $R'(z, \lambda)$  est égal à 1 en l'absence d'aérosols/nuages et quand le signal n'est pas atténué. En présence d'aérosols,  $R'(z, \lambda)$  sera généralement supérieur à 1, mais cette valeur varie en fonction de la densité et des propriétés de la couche d'aérosols.

Enfin, le rapport du signal entre deux longueurs d'onde, appelé rapport de couleur ( $\chi'$ ), est donné par la relation :

$$\chi'(z) = \frac{\beta'_{\lambda_1}(z)}{\beta'_{\lambda_2}(z)} \quad (3.30)$$

Comme la diffusion est plus efficace quand la longueur d'onde est du même ordre de grandeur que le diamètre des particules, ce rapport est indicatif de la taille des aérosols et ainsi de leur nature (gouttelettes d'eau, poussières minérales ou particules de pollution anthropique par exemple).



## CALIOP/CALIPSO

CALIPSO (Cloud and Aerosol Lidar Pathfinder Satellite Observations), a été développé pour mesurer l'effet direct et indirect des aérosols et améliorer notre connaissance à l'échelle globale des propriétés des aérosols. Il circule sur une orbite quasi héliosynchrone à 705 km d'altitude depuis avril 2006 avec une inclinaison nominale d'environ 98.2 degrés.

Les instruments embarqués à bord de CALIPSO sont un lidar (CALIOP) à rétrodiffusion, un imageur infrarouge (IIR) et une caméra grand champ (WFC). La caméra WFC est destinée à fournir le contexte de la mesure lidar de jour, tandis que les images de l'IIR permettent d'obtenir le contexte de la mesure lidar de nuit pour l'analyse scientifique des profils verticaux réalisés par le lidar. Le lidar, sensible à la polarisation, fournit des profils de rétrodiffusion depuis le sol et jusqu'à une altitude de 40 km à deux longueurs d'onde (532 nm avec mesure de la polarisation et 1064 nm) à haute résolution verticale (Winker et al., 2009). L'émetteur laser produit une énergie de 110 mJ pour chacune des longueurs d'ondes, avec une fréquence de répétition de 20,25 Hz. Cette fréquence permet d'obtenir un espacement de 333 mètres entre chaque empreinte, chacune d'elle ayant un diamètre de 90 mètres au sol.

De manière analogue aux capteurs passifs, il existe plusieurs niveaux de traitement des données CALIPSO. Les données brutes ( $L0$ ) sont constituées de l'intensité du signal rétrodiffusé. Les produits de niveau 1 ( $L1$ ) comprennent le signal mesuré par l'instrument géo-localisé et étalonné. Le signal rétrodiffusé atténué ( $\beta'$  de niveau 1B) peut être calculé (après calibration) grâce à des algorithmes d'inversion. Ensuite, il est possible de déterminer les produits de niveau 2 ( $L2$ ) qui comprennent notamment les propriétés optiques des aérosols tels que les coefficients d'extinction et de rétrodiffusion ( $\alpha'$  et  $b'$  respectivement). Dans le cadre de cette thèse, nous utilisons les données de niveau 1B (Powell et al., 2009). La résolution horizontale et verticale des données  $L1B$  (Tableau 3.3) est fonction d'altitude.

Altitude (km)	Résolution horizontale (km)	Résolution verticale (532 nm)	Résolution verticale (1064 nm)
20.2 - 30.1	5/3	180	180
8.3 - 20.2	1	60	60
-0.5 - 8.3	1/3	30	60

Tableau 3.3 – Résolutions horizontales et verticales du lidar CALIOP en fonction d'altitude.

Les données qui en résultent ( $L1B$ ) contiennent des profils de densité moléculaire (MD pour Molecular Density en anglais) et des profils de rétrodiffusion atténuée aux deux longueurs d'onde (532 et 1064 nm). Les profils de densité moléculaire sont dérivés des profils atmosphériques GMAO (Goddard Modeling and Assimilation Office (Bey et al., 2001) pour 33 niveaux verticaux entre la surface et 40 km.

Les sources d'incertitude sur les données  $L1B$  sont liées à l'étalonnage des différents canaux (532, 1064 nm), le bruit instrumental du lidar et le bruit de fond (e.g. Winker et al. 2009; Powell et al. 2009). Comme les mesures de jour contiennent des niveaux de bruit de fond plus importants que ceux de nuit en raison du rayonnement solaire (e.g. Hunt et al. 2009), nous limitons notre analyse aux observations de nuit seulement.

Suivant la même méthodologie que dans Chepfer et al. (2010), les profils mesurés de  $\beta'$  en pleine résolution verticale (583 niveaux d'altitude) et les profils de MD sont interpolés indépendamment sur 80 niveaux verticaux (résolution verticale de 240 m), ce qui conduit aux profils  $\beta'_{vert}$  et  $MD_{vert}$ . Ce moyennage augmente de manière significative le rapport

signal-sur-bruit. La résolution horizontale initiale (333 m) est maintenue afin de filtrer les petits nuages de couche limite.

Pour convertir le profil MD en profil moléculaire ( $\beta'_{mol}$ ), les profils  $\beta'_{vert}$  et  $MD_{vert}$  sont analysés en conditions de ciel clair de la stratosphère ( $22 < z < 25$  km pour les données de nuit). A ces altitudes,  $\beta'_{vert}$  et  $MD_{vert}$  sont moyennés horizontalement sur 33 profils (10 km). Le rapport entre ces deux valeurs ( $\langle \beta'_{vert} \rangle / \langle MD_{vert} \rangle$ ) est ensuite utilisé pour convertir les profils  $MD_{vert}$  en profils  $\beta'_{vert,mol}$ . Ces derniers sont les profils moléculaires qui seraient mesurés en l'absence de nuages/aérosols dans l'atmosphère. Les profils de  $\beta'$  sont alors calculés en divisant  $\beta'_{vert}$  par  $\beta'_{vert,mol}$ . La résolution horizontale est de 330 m et la résolution verticale est de 240 m. Enfin, les pixels situés au-dessous et au niveau de la surface sont rejetées en utilisant le paramètre "altitude d'élévation" fournit dans les données L1B. **Dans la suite de la thèse, nous appellerons produits CALIOP L1 ces données pré-traitées, et par défaut, nous aurons donc  $\beta' = \beta'_{vert}$  et  $\beta'_{mol} = \beta'_{vert,mol}$ .**

Le rapport de couleur  $\chi'$  est calculé avec  $\lambda_1 = 1064$  nm et  $\lambda_2 = 532$  nm. De manière générale,  $\chi'$  est inférieur à 1 en présence des petites particules (par rapport à la longueur d'onde). Cependant, dans le cas de couches denses d'aérosols absorbants, comme le carbone suie,  $\chi'$  peut devenir supérieur à 1 car l'absorption à 532 nm sera plus importante qu'à 1064 nm. Cependant, ce paramètre ne peut être utilisé directement comme un outil d'identification du type d'aérosols du fait qu'il y a un chevauchement important entre les distributions de  $\chi'$  pour différents types d'aérosols (Omar and al, 2009). Il est utile uniquement qualitativement pour distinguer les grosses particules des petites.

### Filtre nuages

En raison d'une forte contribution de nuages au signal reçu, les profils utilisées pour l'étude des aérosols doivent être filtrées (Figure 3.9). Pour cela, nous utilisons des profils de rapport de diffusion à la haute résolution initiale en raison d'une faible extension horizontale (1 km) des nuages de couche limite (e.g. Medeiros et al. 2010; Koren et al. 2008; Konsta et al. 2012).

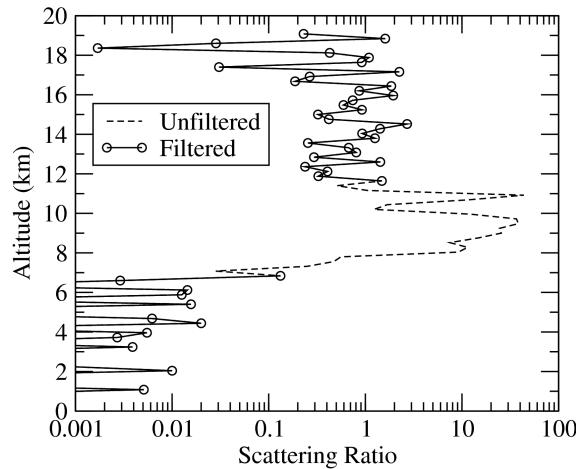


Figure 3.9 – Filtre nuages basé sur  $R'$ . La valeur de  $R'$  utilisé pour la détection des nuages dépend de l'altitude et de la résolution des données.

Le seuil de  $R'$  utilisé pour la détection des nuages dépend de l'altitude et de la résolution des données, en raison de la nature du bruit imposé sur le signal de rétrodiffusion. Pour cette

étude, nous considérons un profil ( $i$ ) d'être "contaminée" par un nuage lorsque  $R'_{i\pm 1} > 7.5$  (moyenne sur environ 1 km, pour réduire le niveau de bruit). Cette valeur-seuil a été ajustée (les tests de sensibilité réalisés ne sont pas présentés ici) pour la résolution utilisée dans cette étude (résolution verticale de 240 m et horizontale de 330 m), comme dans [Chepfer et al. \(2010\)](#).

Pour des nuages optiquement épais (généralement d'épaisseur optique supérieure à 3), le signal lidar est complètement atténué au-dessous du nuage, et les pixels situés sous le nuage sont filtrés. Pour les nuages de haute altitude d'épaisseur optique modérée ( $< 3$ , typiquement des cirrus), le signal lidar est atténué dans les observations, c'est à dire que  $R'$  peut être inférieur à 1 en dessous du nuage, mais au-dessus du dernier niveau vertical du modèle (en fonction de la configuration choisie). Cette atténuation ne sera alors pas pris en compte dans le modèle, et un biais artificiel peut se produire entre le  $R'$  modélisé et observé.

Enfin, les données filtrées sont re-projetés à la résolution (horizontale et verticale) du modèle.

### 3.3 Comparaison inter-instruments de l'AOD en Euro-Méditerranée

J'ai présenté dans les paragraphes précédents plusieurs techniques et instruments permettant la mesure de l'AOD disponibles et que nous allons analyser par la suite. Cependant, les différences sur les caractéristiques (e.g. résolution spatiale, longueur d'onde d'observation) et sur les algorithmes de traitement des données entre les différents capteurs peuvent rendre difficile la synergie entre les observations disponibles.

L'étude de [Bréon et al. \(2011\)](#) a déjà démontré les capacités de MODIS et PARASOL à fournir des informations précises sur la charge en aérosols présente dans l'atmosphère. Plus précisément, au-dessus de l'océan, PARASOL est très bien corrélée avec AERONET (0.916 pour l'AOD totale à 870 nm et 0.773 pour l'AOD du mode fin à 550 nm) avec une RMSD de 0.079 et 0.077 respectivement. MODIS présente également une très bonne corrélation (0.845 pour l'AOD totale à 870 nm, 0.746 pour l'AOD du mode fin à 550 nm) avec une RMSD 0.085 et 0.08 respectivement. Au-dessus des continents, la corrélation entre PARASOL et AERONET est égale à 0.840 pour l'AOD du mode fin à 550 nm avec une RMSD de 0.113. Pour MODIS, la corrélation est légèrement plus faible (0.753) avec une RMSD de 0.148 tandis que pour l'AOD totale la corrélation est 0.904 avec une RMSD de 0.125.

Dans l'objectif de vérifier la cohérence entre les observations MODIS et PARASOL et d'évaluer leur performance par rapport aux mesures AERONET sur ma région d'étude (Europe et Méditerranée), une étude de comparaison a été menée en collaboration avec le Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA) à Lille. Les données utilisées pour cette partie de ce travail (à différentes longueurs d'onde, selon leur disponibilité) nous ont été fournies par D. Tanré et F. Ducos.

Vu que les algorithmes d'inversion utilisés pour la restitution de l'AOD sont différents pour l'océan et la terre nous présentons séparément les résultats obtenus pour les deux types de surface. Nous utilisons des données co-localisées ( $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ ) pour l'intervalle 2005 - 2010. Au-dessus de l'océan, nous comparons l'AOD totale et l'AOD du mode fin à 870 nm (865 nm pour PARASOL). Nous rappelons que au-dessus des continents, seule la comparaison du mode fin entre PARASOL, MODIS et AERONET est possible actuellement car les observations PARASOL sont basées sur la polarisation de la lumière. Puisque la

polarisation est principalement contrôlée par les petites particules, seul le mode fin (ou mode d'accumulation) peut être récupéré. Nous utilisons l'AOD du mode fin à 670 nm et l'AOD totale à 500 nm pour la comparaison seulement entre MODIS et AERONET.

### AOD au-dessus de la mer

La comparaison entre les deux capteurs et AERONET est présentée sur la [Figure 3.10](#). Il est à noter que pour cette comparaison nous considérons seulement les sites AERONET sur les côtes. La carte de corrélation illustre le degré de correspondance par site AERONET et le diagramme de Taylor résume la comparaison statistique en une seule figure. Ces résultats sont présentés en détail dans le [Tableau 3.4](#).

Concernant l'AOD totale nous constatons que MODIS est légèrement mieux corrélé (0.88) avec AERONET que PARASOL (0.82). De plus, l'écart type de MODIS est plus proche de celui d'AERONET et la différence des moindres carrés (RMSD) est plus petite que celle de PARASOL.

Pour l'AOD du mode fin, la corrélation est plus faible que pour l'AOD totale (0.64 pour PARASOL et 0.61 pour MODIS). En choisissant de filtrer les données pour comparer uniquement l'AOD pour laquelle le coefficient d'Angström ( $\alpha$ ) est supérieur à 1.5, nous nous limitons aux plus petites particules et nous trouvons que la corrélation augmente à 0.78 pour PARASOL et 0.70 pour MODIS. En effet, en considérant tous les coefficients d'Angström, on peut avoir une contribution par des particules un peu plus grosses (par exemple  $\alpha$  égal à 1) qui se mélangent à des particules petites (e.g.  $\alpha = 1.5$ ). L'AOD des particules pour  $\alpha = 1$  n'aura pas la même pente que l'AOD des particules pour  $\alpha=1.5$  et donc on aura de la "dispersion" lorsqu'on considère toutes les valeurs.

	AOD mode fin			# Obs.	AOD totale			# Obs.
	$R$	$RMSD$	$\sigma$		$R$	$RMSD$	$\sigma$	
<i>AERONET</i>	1.000	0.000	0.042		1.000	0.000	0.138	
<i>MODIS</i>	0.6063	0.034	0.035	3061	0.883	0.061	0.125	3061
<i>PARASOL</i>	0.6383	0.036	0.039	6664	0.824	0.095	0.168	6664

Tableau 3.4 – Corrélation, RMSD et écart-type entre MODIS, PARASOL et AERONET pour l'AOD totale et l'AOD du mode fin au-dessus de la mer.

### AOD au-dessus du continent

Pour l'AOD totale au-dessus du continent, MODIS présente une bonne corrélation de 0.82, une RMSD de 0.13 et un écart-type très proche de celui des données AERONET. Pour l'AOD du mode fin (à 670 nm), nous constatons que PARASOL est légèrement mieux corrélée avec AERONET que MODIS (0.79 contre 0.73). Ces résultats sont présentés en détail dans le [Tableau 3.5](#).

Ceci s'explique en partie par un certain décalage dans le rayon de coupure des aérosols considérée. Pour AERONET le rayon de coupure ( $R_{cut-off}$ ) est égal à 0.6  $\mu m$  tandis que pour MODIS et PARASOL il n'est pas constant car l'inversion des mesures se base sur des tableaux de correspondances des réflectances comme nous l'avons vu précédemment. En se limitant à un rayon de coupure de 0.3  $\mu m$  pour la restitution de l'AOD du mode fin AERONET (données préparées au LOA), la corrélation augmente à 0.86 pour PARASOL et 0.78 pour MODIS. De plus, en forçant  $\alpha = 1.5$  pour garder que les cas favorables c'est à dire ceux où le type d'aérosols est à peu près le même et où la relation entre l'AOD du

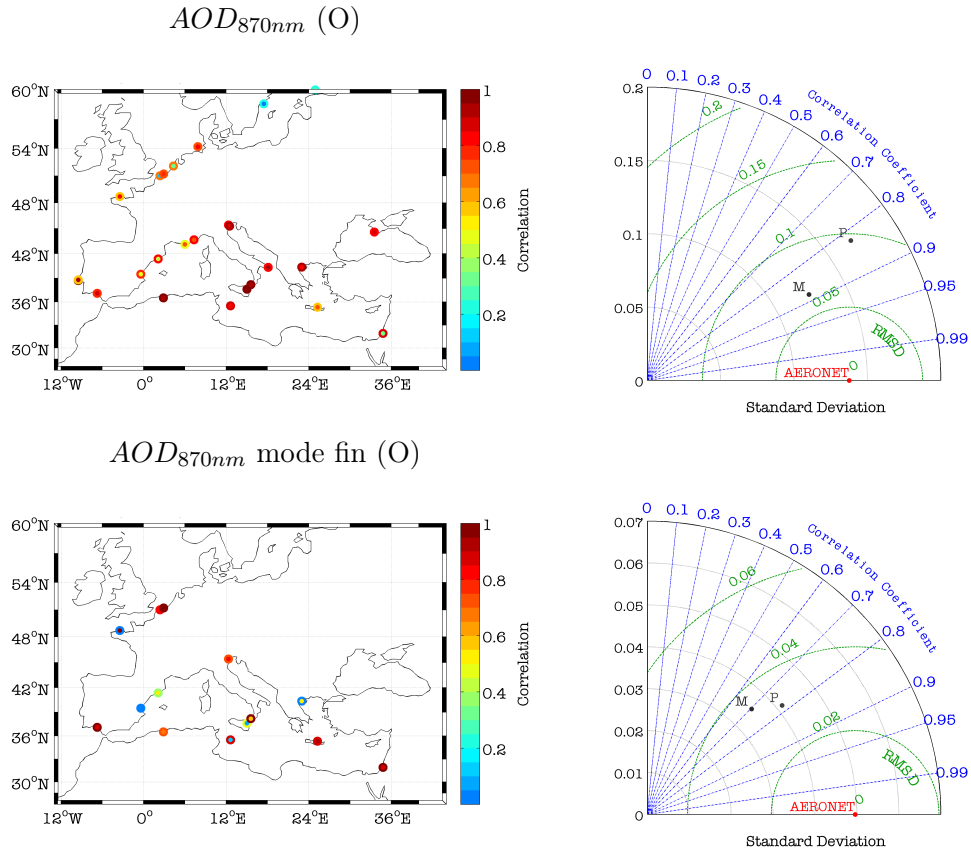


Figure 3.10 – Cartes de corrélation et diagramme de Taylor pour l'AOD totale entre MODIS et AERONET et l'AOD du mode fin pour MODIS, PARASOL et AERONET au-dessus de la mer (O) pour l'intervalle 2005-2010. Le grand cercle coloré représente MODIS et le plus petit PARASOL.

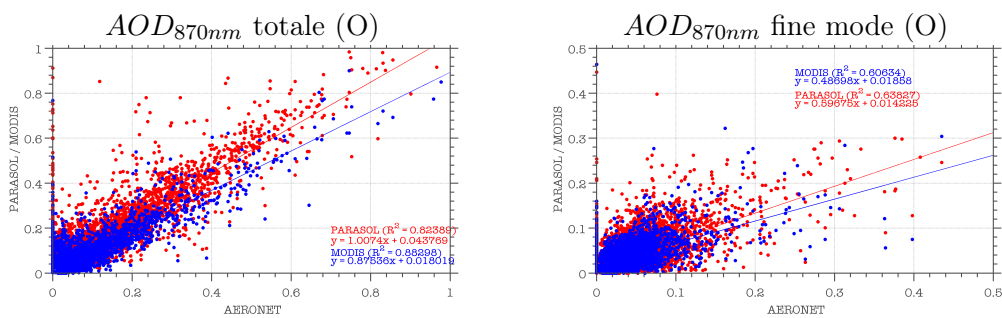


Figure 3.11 – Nuage de points pour l'AOD totale et l'AOD du mode fin au-dessus de la mer.

mode fin et l'AOD totale est presque constante, on obtient une corrélation de 0.92 pour PARASOL et 0.87 pour MODIS.

Nos résultats suggèrent qu'une combinaison des produits PARASOL et MODIS nous permettrait d'optimiser l'apport scientifique des mesures satellitaires passives, avec l'utilisation de l'AOD totale de MODIS au-dessus de l'océan et l'AOD du mode fin de PARASOL

	AOD mode fin			# Obs.	AOD totale			# Obs.
	$R$	$RMSD$	$\sigma$		$R$	$RMSD$	$\sigma$	
<i>AERONET</i>	1.000	0.000	0.106		1.000	0.000	0.203	
<i>MODIS</i>	0.727	0.080	0.113	12447	0.823	0.126	0.212	12552
<i>PARASOL</i>	0.781	0.066	0.085	21047	N/A	N/A	N/A	N/A

Tableau 3.5 – *Corrélation, RMSD et écart-type entre MODIS, PARASOL et AERONET pour l'AOD totale et l'AOD du mode fin au-dessus du continent.*

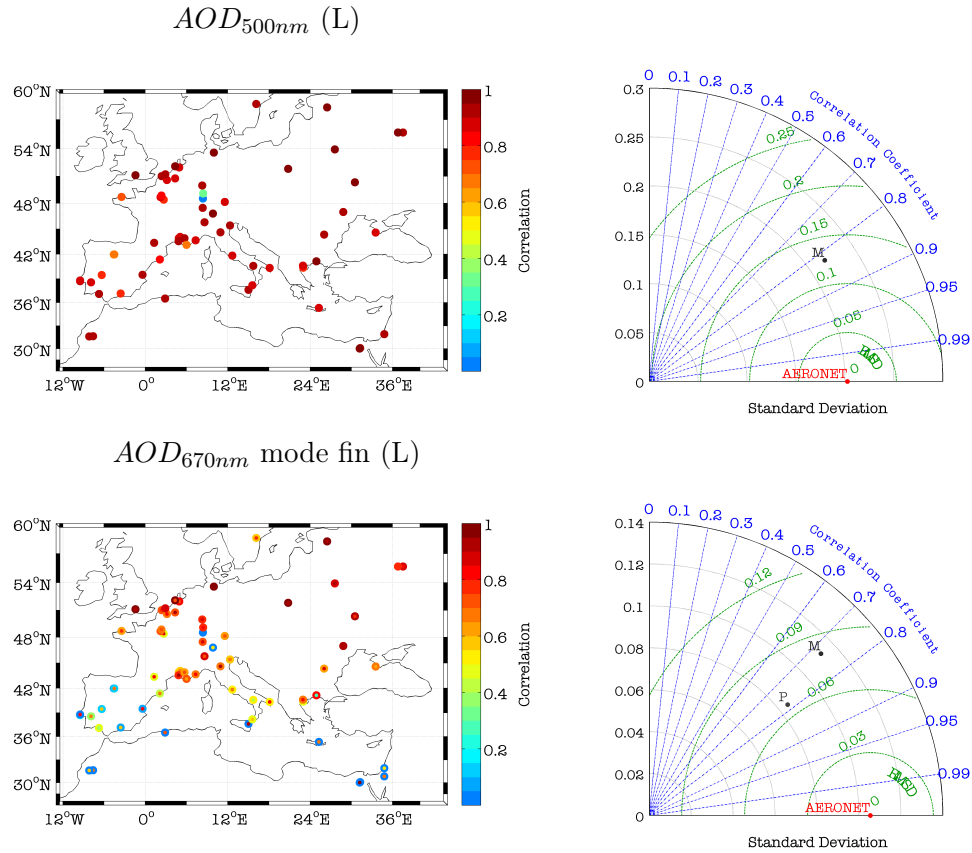


Figure 3.12 – *Cartes de corrélation d'AOD entre MODIS, PARASOL et AERONET au-dessus de la terre (L) pour l'intervalle 2005-2010. Le grand cercle coloré représente MODIS et le plus petit PARASOL.*

au-dessus de la terre. Ces conclusions sont en accord avec la littérature (Bréon et al., 2011; Tanré et al., 2011).

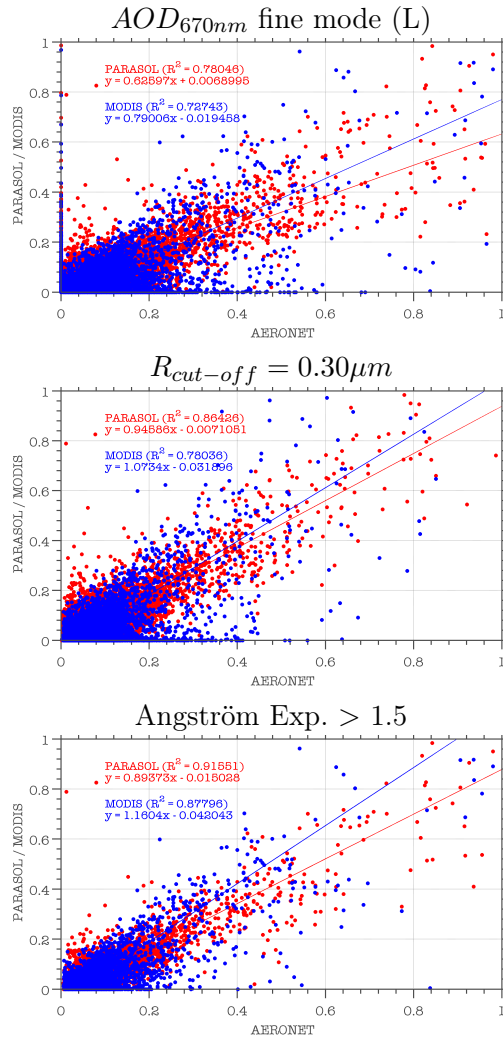


Figure 3.13 – Nuage de points pour l’AOD du mode fin au-dessus de la terre. La corrélation augmente en forçant le rayon de coupure pour AERONET à 0.3 μm et le coefficient d’Angström à 1.5 pour se limiter aux plus petites particules.



### 3.4 Conclusions

Nous avons vu dans ce chapitre les différentes observations utilisées dans cette thèse. Les mesures au sol par les réseaux AIRBASE et EMEP sur la masse totale en surface des  $PM_{10}$  et  $PM_{2.5}$  et, pour certains sites, la masse de différentes espèces particulières sont indispensables pour une surveillance précise de la qualité de l'air. L'incertitude sur ce type de mesures ne dépasse pas 25% de la valeur de concentration mesurée. Dans le cadre de cette thèse, elles sont très utiles pour faire un bilan de la pollution particulaire et de sa variabilité en Europe et Méditerranée, puis pour évaluer la qualité des simulations CHIMERE en surface. Pour l'analyse de l'impact du transport à longue distance de la pollution, ces observations ne sont cependant pas suffisantes car les réseaux manquent encore de couverture spatiale, et les observations en surface ne renseignent pas sur le transport possible de panaches en altitude.

Les observations par télédétection apportent dans ce cadre une information complémentaire sur :

- le contenu total en aérosol sur la colonne atmosphérique grâce à l'AOD dans le cas de mesures passives ;
- la distribution verticale dans le cas d'observations lidar ;

La taille des aérosols peut également être analysée en combinant l'AOD total et l'AOD du mode fin, ou en analysant l'exposant d'Angstrom ou le rapport de couleur pour les observations lidar.

Même si la télédétection depuis le sol par le réseau AERONET ne permet pas une couverture globale, elle apporte de façon fiable et continue des informations détaillées sur les caractéristiques optiques et microphysiques des aérosols dans des sites clés. Contrairement aux observations satellitaires, le signal reçu ne contient presque pas de contribution de surface, ce qui minimise les sources d'incertitude. Par exemple, la précision sur l'AOD est estimée à  $\sim 0.01$ . Ces observations apportent donc une bonne référence pour des comparaisons quantitatives des données sur les aérosols et sont couramment utilisées pour valider à la fois les observations satellitaires et les simulations de modèles.

La comparaison entre les observations d'AOD MODIS et PARASOL par rapport aux observations AERONET a montré la bonne qualité des mesures et validé la cohérence entre les différents capteurs avec une très bonne corrélation ( $\sim 0.8$ ). La meilleure stratégie pour permettre une analyse aussi fiable que possible semble être de favoriser les mesures de l'AOD totale MODIS, et de l'AOD du mode fin PARASOL. Cette conclusion n'est cependant pas toujours applicable en pratique en fonction des cas d'étude. En particulier, il est souvent important d'avoir à la fois la mesure simultanée de l'AOD totale et de l'AOD du mode fin, ce qui n'est pas possible avec PARASOL sur les continents. Par ailleurs, l'inconvénient principal de la télédétection passive dans le visible est que les mesures ne sont possibles que le jour et en absence de nuages, ce qui peut significativement limiter la couverture spatio-temporelle des mesures.

Enfin, les observations lidar représentent une source d'information précieuse pour l'étude de la structure verticale des aérosols (importante pour l'analyse du transport à longue distance) et de sa variabilité spatio-temporelle. La principale limitation provient ici de la géométrie de mesure au nadir, qui limite la couverture spatio-temporelle. L'analyse combinée avec les observations passives permet d'avoir un contexte plus grande échelle sur l'AOD (régions source, transport des panaches, etc.) et éventuellement une extension spatiale des propriétés déduites du lidar. Nous favorisons dans ce travail de thèse l'analyse des observations de niveau 1B de rapport de diffusion atténué (interpolées et moyennées de manière à augmenter le rapport signal sur bruit) afin de s'affranchir des hypothèses sur



le type d'aérosol réalisées lors du calcul des observations de niveau 2. Un filtre nuage a été réalisé pour extraire uniquement l'information sur les aérosols.

Ces observations seront analysées dans le [Chapitre 4](#) afin de caractériser la variabilité des propriétés des aérosols dans la région Europe et Méditerranée. Elles seront par ailleurs exploitées dans le [Chapitre 6](#) pour analyser la capacité de CHIMERE à simuler les aérosols, plus particulièrement pour les cas de transport à longue distance de panaches denses issus de soulèvements de poussières minérales ou de feux de végétation. Afin de permettre la comparaison entre simulation des concentrations et observations de l'impact radiatif par les instruments de télédétection, un outil de calcul des propriétés optiques et de la rétrodiffusion lidar à partir des sorties de simulation a été développé, et est décrit dans le [Chapitre 5](#).

## 4 | Variabilité inter-annuelle des aérosols

### 4.1 Introduction

Une analyse de la variabilité inter-annuelle des aérosols a été réalisée à partir des observations disponibles sur la région Euro-Méditerranée et pour la période couvrant les années de 2004 à 2010. Cette analyse va permettre de quantifier sur plusieurs années les concentrations de fond pour les aérosols et d'identifier s'il existe des zones systématiques de valeurs extrêmes. Pour cela, l'analyse va s'attacher à quantifier la variabilité spatiale et temporelle des aérosols en utilisant le maximum de mesures disponibles et en recoupant les informations issues de différents capteurs. Les bases de données d'observations utilisées dans ce chapitre sont AERONET et AIRBASE pour des mesures de réseaux en surface et les observations de la constellation A-TRAIN pour les mesures dans toute la troposphère. Ces observations sont complémentaires : les stations AIRBASE ont pour objectif une surveillance de la qualité de l'air et sont donc principalement localisées dans les zones polluées, le réseau AERONET permet également de surveiller des niveaux de fond et de donner une information sur la colonne atmosphérique, et, enfin, les observations satellitaires permettent une surveillance des grandes structures avec une bonne couverture spatiale mais une couverture temporelle plus limitée. Les observations satellitaires présentent également une excellente cohérence dans le temps et l'espace, ce qui n'est pas forcément le cas pour les réseaux au sol.

L'analyse inter-annuelle se focalise principalement sur les mesures des réseaux AERONET et AIRBASE pour la stabilité de l'incertitude et de la représentativité des mesures sur la période de 2004 à 2010. Les observations satellites apportent une meilleure couverture spatiale sur la région étudiée, mais cette couverture spatiale sera plus variable d'un mois à l'autre (en raison de la couverture nuageuse principalement). Nous limiterons l'analyse ici aux structures générales observées par MODIS/AQUA. Une analyse plus précise des mesures satellites sera présentée pour les études de cas, comme l'été 2007.

Afin de pouvoir quantifier des variabilités saisonnières ou inter-annuelles de manière synthétique, les calculs sont réalisés sur des sous-domaines présentés sur la [Figure 4.1](#). Ces trois sous-domaines, appelés dans la suite "ouest", "centre" et "est" ont été choisis pour satisfaire différents critères à la fois liés aux réseaux et au transport de panaches :

- Les flux de transport d'aérosols étant souvent latitudinaux, on définit uniquement trois grands sous-domaines de l'ouest vers l'est.
- Les valeurs des longitudes sont choisies pour pouvoir représenter des nombres de stations les plus proches possibles entre AERONET et AIRBASE et pour chacun des sous-domaines.
- Les valeurs des longitudes sont aussi choisies pour respecter au mieux les climatologies connues de panaches sur cette région Euro-Méditerranée, à la fois pour les aérosols minéraux (dust) et les feux.
- Enfin, ces valeurs de longitude sont choisies pour ne pas "couper" en deux des zones de fortes émissions anthropiques comme la plaine du Pô, par exemple.

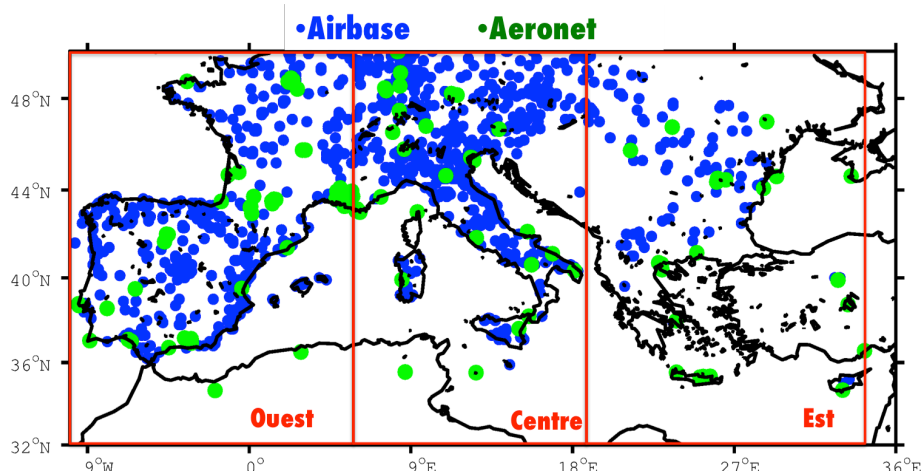


Figure 4.1 – Carte de la zone Euro-Méditerranée avec les trois sous-domaines d'analyse définis : "ouest", "centre" et "est". Les points de couleurs sur la carte représentent les stations AIRBASE et AERONET.

## 4.2 Les concentrations près de la surface

La directive "2008/EC/50" de l'Union Européenne a été mise en place pour la régulation de la qualité de l'air. Elle définit différentes limites de dépassement pour les concentrations des particules mesurées près de la surface (à une hauteur de 3.5 m au dessus du sol). Elle ne concerne actuellement que les particules de diamètre inférieur à  $10\ \mu\text{m}$  (les  $\text{PM}_{10}$ ). Les deux seuils réglementaires sont :

- La valeur moyenne journalière ne doit pas dépasser  $50\ \mu\text{g m}^{-3}$  plus de 35 jours par an,
- La valeur moyenne annuelle ne doit pas dépasser  $40\ \mu\text{g m}^{-3}$

Ces seuils sont appliqués aux données des stations de surface en Europe, dont les données sont accessibles via la base de données AIRBASE, que nous allons utiliser ici. Nous étudierons en parallèle les concentrations de  $\text{PM}_{2.5}$  et  $\text{PM}_{10}$ .

Le [Tableau 4.1](#) montre le nombre de stations de mesures pour les  $\text{PM}_{10}$  pour chacun des trois sous-domaines définis ("ouest", "centre" et "est"). On note un accroissement quasi linéaire de ce nombre de stations depuis 2004, avec un nombre de stations beaucoup plus grand dans les domaines "ouest" et "centre", avec plus de 200 stations disponibles. Le nombre de stations sur le domaine "est" est en forte augmentation depuis 2004, mais leur nombre reste limité, avec moins de 70 stations sur l'ensemble de la zone. Cette disparité entre le nombre de stations disponibles peut avoir une influence sur l'analyse des résultats, même si, globalement, leur nombre est suffisant pour mener des études statistiques robustes. Les trois sous-domaines disposent principalement de stations de type urbain et péri-urbain. Les stations rurales sont plus rares, voire quasi-inexistantes sur le domaine "est". Cette particularité sera à discuter par la suite, car le nombre et le type de stations peuvent avoir un impact direct sur l'analyse qui est présentée en terme de masse et distribution en taille d'aérosols. Au cours de la période, le nombre relatif de stations en zone urbaine et périurbaine est relativement stable. On note toutefois une petite variabilité : sur la région "ouest", on constate une légère diminution de 80% en 2004 à 73% en 2007-2008 pour réaugmenter jusqu'à 77% en 2010 ; pour la région "centre", on passe de 94% en 2004, à  $\sim 87\text{-}88\%$  en 2005-2008,  $\sim 84\%$  en 2010.

Domaine	Année						
	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010
<i>Domaine "ouest"</i>							
Rural	21	38	46	45	53	52	38
Fond	25	33	30	35	38	38	42
Péri-urbain	49	72	72	71	81	96	90
Urbain	133	179	149	150	170	180	175
Total	228	322	297	301	342	366	345
<i>Domaine "centre"</i>							
Rural	1	7	10	3	20	24	19
Fond	3	5	6	6	9	13	17
Péri-urbain	14	21	31	43	56	58	62
Urbain	53	64	100	99	126	141	135
Total	71	97	147	161	211	236	233
<i>Domaine "est"</i>							
Rural	0	0	0	0	0	1	1
Fond	3	4	4	4	3	3	4
Péri-urbain	5	6	6	7	7	11	15
Urbain	24	26	35	37	40	45	42
Total	32	36	45	48	50	60	62

Tableau 4.1 – *Disponibilité des stations AIRBASE sur la période d'étude. Le nombre de stations est sommé sur les trois sous-domaines "ouest", "centre" et "est", et classé par type d'environnement.*

#### 4.2.1 Variabilité spatiale

Afin de pouvoir spatialiser les zones où les plus fortes concentrations sont observées sur la zone Euro-Méditerranée, la [Figure 4.2](#) présente une moyenne des concentrations de  $PM_{2.5}$  et  $PM_{10}$  pour toute la période de 2004 à 2010, sans distinction de saison ou d'année.

Les plus hauts niveaux de concentration de surface en particules sont localisés au Nord de l'Italie, dans la plaine du Pô et en Europe de l'Est, avec des valeurs moyennes au-dessus de 30 et 60  $\mu g m^{-3}$  pour les  $PM_{2.5}$  et  $PM_{10}$ , respectivement. Cette localisation des plus fortes concentrations est à relier directement aux zones les plus industrialisées d'Europe et a donc ici des origines principalement anthropiques. Il est à noter que en Europe de l'Est, les feux de forêt constituent une source d'aérosols non négligeable, notamment pendant la période estivale (cf. [Chapitre 6](#)).

Des niveaux importants mais plus modérés sont observés en Espagne. Dans ce cas, la contribution relative des  $PM_{2.5}$  par rapport au total en  $PM_{10}$  ne dépasse jamais 50%, montrant une prédominance de particules plus grosses qu'en Italie ou en Europe de l'Est. On a donc ici une signature de particules minérales, originaires d'Afrique et transportées puis déposées dans le sud de l'Europe.

En conclusion, **les plus fortes valeurs observées en Europe et en moyenne sur 7 ans pour les  $PM_{2.5}$  sont d'origine anthropique et correspondent au secteur industriel de la plaine du Pô.** Le réseau d'observations plus fourni en  $PM_{10}$  qu'en  $PM_{2.5}$  permet de voir que les plus fortes moyennes de  $PM_{10}$  sont à l'est du domaine Euro-Méditerranée.

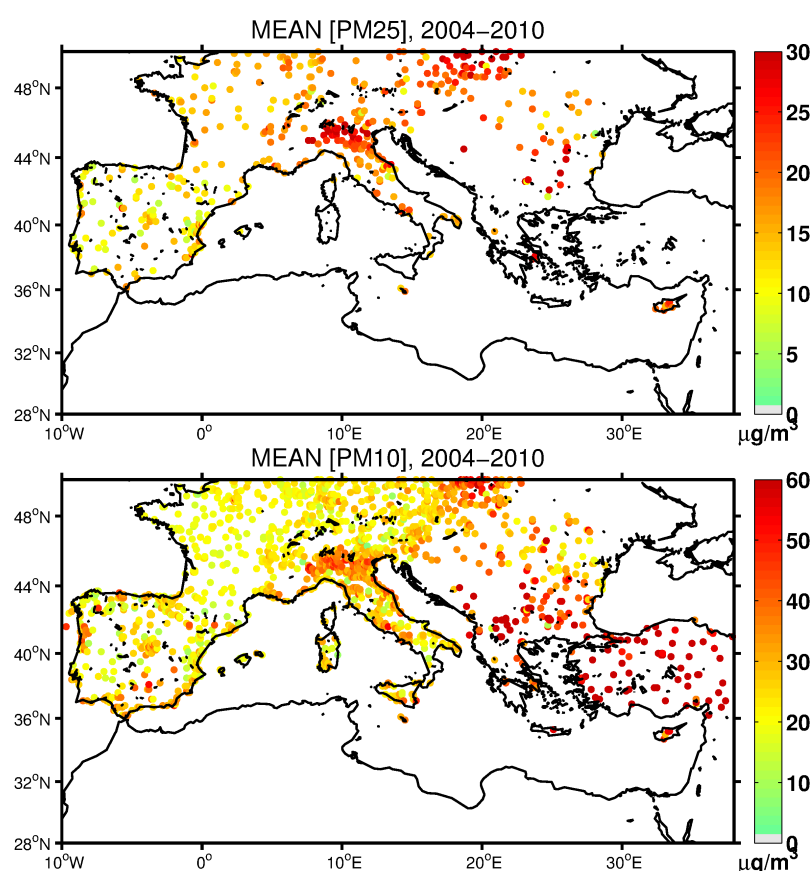


Figure 4.2 –  $PM_{2.5}$  (haut) and  $PM_{10}$  (bas) en  $\mu\text{g m}^{-3}$  en moyenne sur toute la période de 2004 à 2010.

#### 4.2.2 Variabilité saisonnière

Afin d'isoler une variabilité saisonnière, les mêmes concentrations de surface sont moyennées pour toutes les années, de 2004 à 2010, mais en fonction des mois de l'année : DJF pour décembre, janvier et février ; MAM pour mars, avril et mai ; JJA pour juin, juillet et août et SON pour septembre, octobre et novembre. Les résultats sont présentés sur la Figure 4.3 en terme de pourcentage de nombres de jours où les concentrations ont dépassé une valeur de  $50 \mu\text{g m}^{-3}$  par saison sur le nombre total de dépassements pendant toute l'année.

Les plus forts pourcentages de dépassement sont observés pendant les mois DJF et en Europe du nord-ouest, correspondants aux pays les plus industrialisés et agricoles. Les structures spatiales sont similaires pour les mois de printemps (MAM) et d'automne (SON) mais avec des pourcentages de dépassement plus faibles, entre 20% et 50%. Finalement, la spatialisation des dépassements est différente pour les mois d'été (JJA) où les valeurs supérieures à 50% sont surtout observées en Espagne, au Portugal, en Italie et en Grèce, dénotant l'importance des aérosols liés aux feux et aux aérosols minéraux qui s'ajoutent aux sources anthropiques. Cet aspect sera discuté en détail plus loin grâce aux mesures optiques.

En conclusion, et une fois mises en relation avec les types d'émissions saisonnières, ces cartes montrent qu'il n'y a jamais de régions sans dépassement des seuils en Europe et que les valeurs sont dominées par :

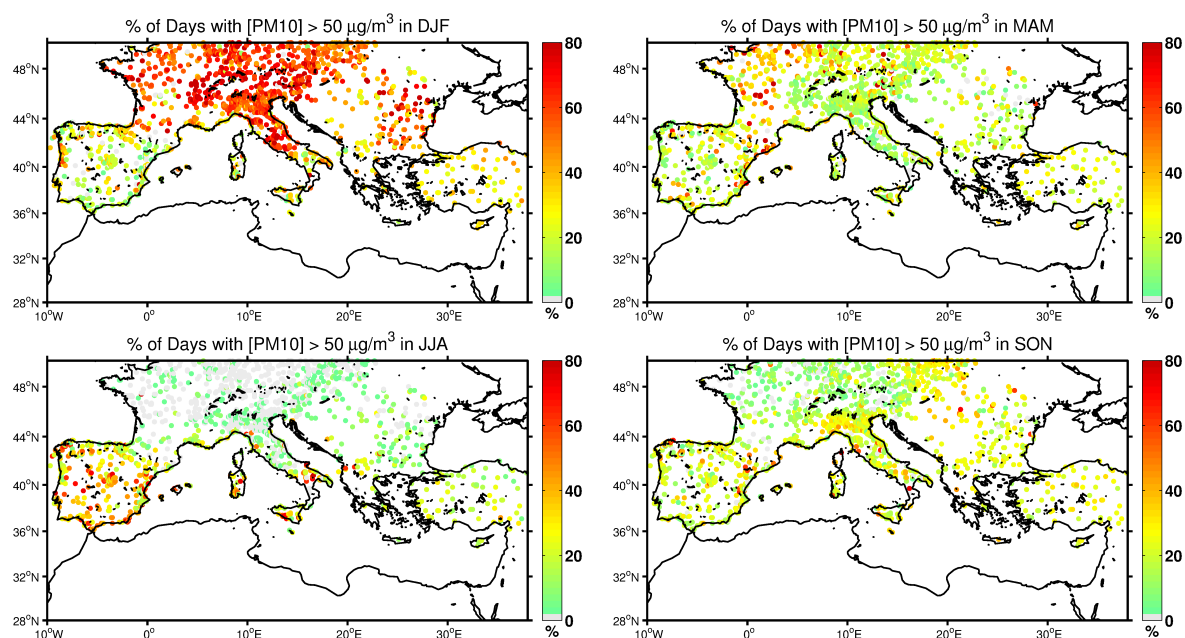


Figure 4.3 – Pourcentage du nombre de dépassements par saison ( $PM_{10} > 50 \mu g m^{-3}$ ) sur le nombre total de dépassements pendant toute l'année, sur la période 2004-2010.

- En hiver et au nord, les sources anthropiques (industries et agricoles)
- En été et au sud, sur le pourtour Méditerranéen, les sources naturelles (biogéniques et minérales)

### 4.2.3 Variabilité inter-annuelle

Après avoir présenté la spatialisation des valeurs de concentrations sur l'ensemble de la région, cette section présente leur variabilité temporelle. La Figure 4.4 présente des concentrations de surface de  $PM_{2.5}$  et  $PM_{10}$  pour les trois sous-domaines en zone Euro-Méditerranée : ouest, centre et est. Les valeurs sont données en moyenne mensuelle et pour la période de 2004 à 2010, afin de dégager la tendance à long terme ainsi que la variabilité intra-annuelle.

On note tout d'abord que les variabilités suivent les mêmes tendances pour les  $PM_{2.5}$  et  $PM_{10}$ . Les **maxima des concentrations mensuelles sont systématiquement observés en hiver**. Tous les trois domaines montrent une tendance à une réduction des concentrations moyennes. Le domaine "centre" se distingue par des cycles saisonniers très marqués et une forte homogénéité spatiale car les écarts-types sont systématiquement plus faibles que pour les zones "ouest" et "est". Le domaine "ouest" montre des valeurs avec une variabilité intra-annuelle limitée, ainsi que des concentrations moyennes plus faibles que pour les autres sous-domaines. C'est le cas à la fois pour les  $PM_{2.5}$  et  $PM_{10}$ , alors que la faible variabilité intra-annuelle n'est observée que pour les  $PM_{2.5}$  sur le domaine "est".

En terme de masse, les  $PM_{2.5}$  représentent la moitié des particules sur les domaines "ouest" et "est", alors qu'ils représentent la quasi-totalité de la masse observée sur le domaine "centre". On relève aussi quelques cas où les séries chronologiques de  $PM_{2.5}$  montrent des valeurs plus élevées que les  $PM_{10}$  : il ne faut y voir qu'un effet de moyenne sur des stations différentes, les mesures n'étant pas réalisées forcément aux mêmes endroits entre  $PM_{2.5}$  et  $PM_{10}$ .

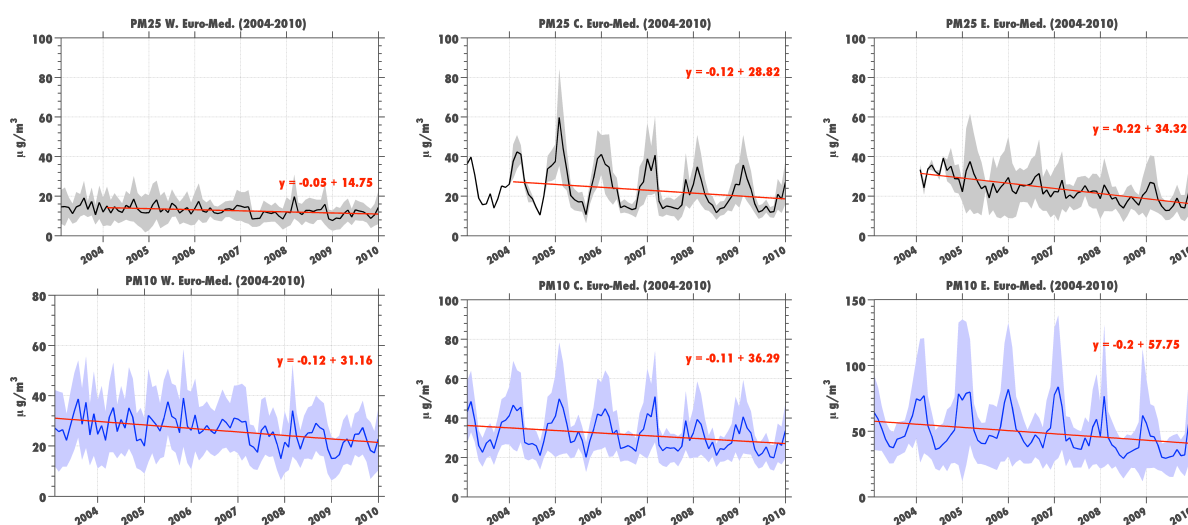


Figure 4.4 – Concentrations de  $PM_{2.5}$  (haut) et  $PM_{10}$  (bas) mesurés en surface, en moyenne mensuelles et pour chaque sous-domaine (ouest, centre et est). Les écart-types sont retrésentés par les zones ombrées. La tendance pluri-annuelle de  $PM_{10}$  est représentée par les courbes rouges.

Afin de caractériser la masse observée de ces aérosols en fonction de la localisation des stations de mesures par rapport aux sources, la Figure 4.5 présente des histogrammes de concentrations à la fois pour les  $PM_{2.5}$  et  $PM_{10}$ . Les valeurs sont données en fonction de la typologie des stations : rurale (*rural*), de fond (*background*), urbaine (*urban*) et péri-urbaine (*suburban*).

Ces résultats montrent tout d'abord la grande diversité de typologie des stations en fonction des sous-domaines étudiés. Alors que le domaine "ouest" montre un équilibre entre les stations allant de urbaine à rurale, le domaine "centre" montre qu'au moins la moitié des stations sont de type "urbain". Ce déséquilibre de typologie est à garder en mémoire lors de l'analyse des observations, puisque la localisation même des stations aura un impact important sur les conclusions en terme de distributions des concentrations et de dépassement des seuils.

La comparaison entre les trois sites montre tout d'abord des formes de distributions différentes : alors que les distributions sur les domaines "ouest" et "est" couvrent plusieurs dizaines de  $\mu\text{g m}^{-3}$  (de 0 à 40  $\mu\text{g m}^{-3}$  pour les  $PM_{2.5}$  et de 0 à 70  $\mu\text{g m}^{-3}$  pour les  $PM_{10}$ ), les distributions pour le domaine "centre" montre une distribution plus étroite (de 10 à 20  $\mu\text{g m}^{-3}$  pour les  $PM_{2.5}$  et de 10 à 40  $\mu\text{g m}^{-3}$  pour les  $PM_{10}$ ). Le domaine "centre" étant principalement composé de stations de types "urbaines" et "péri-urbaines", les mesures reflètent des émissions de type "trafic", "industriel" ou "résidentiel" principalement. Ces émissions ont une plus grande régularité tout au long de l'année par rapport aux sources sources naturelles, on peut donc s'attendre à des formes de distributions plus piquées autour d'une valeur moyenne.

Les maxima des distributions montrent avant tout la part importante des mesures urbaines dans le bilan en particules de surface. Cela est dominant pour le **domaine "est"** ou la majorité des valeurs supérieures à 40  $\mu\text{g m}^{-3}$  en  $PM_{10}$  sont mesurées en ville.

Finalement, la Figure 4.6 présente le pourcentage de concentrations de  $PM_{10}$  qui ont dépassé les normes maximales admises et pour chacun des sous-domaines. Le comptage



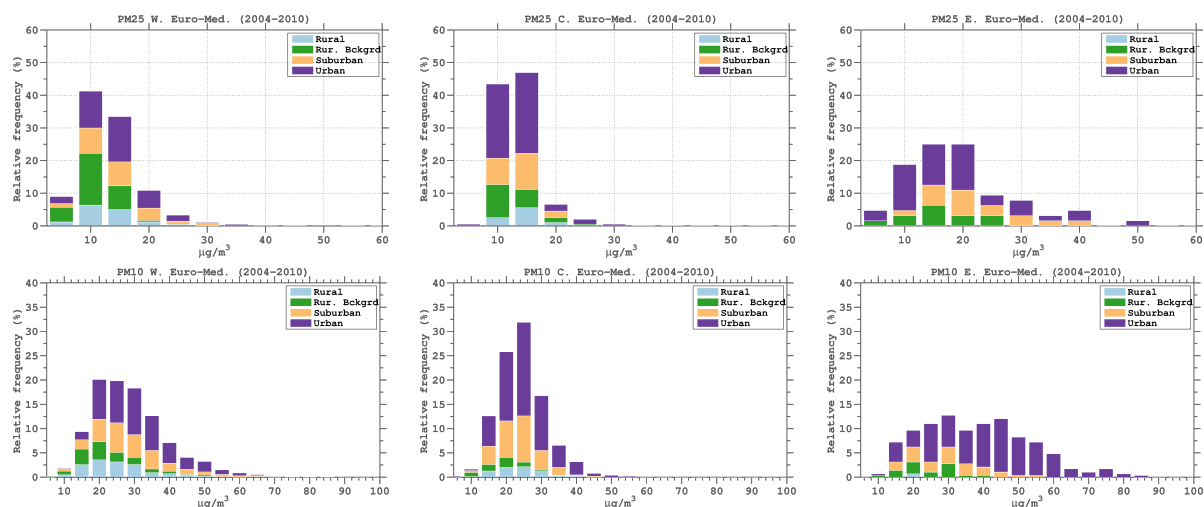


Figure 4.5 – Histogrammes de concentrations de  $PM_{2.5}$  (haut) et  $PM_{10}$  (bas) mesurés en surface et pour chaque sous-domaine ("ouest", "centre" et "est").

réalisé consiste à retenir une station quand la concentration observée est supérieure à  $50 \mu\text{g m}^{-3}$  dans la journée. On retrouve ici le cycle saisonnier très marqué pour le domaine "centre" et ceux plus effacés pour les domaines "ouest" et "est". Pour les trois domaines, la tendance pluri-annuelle est à une baisse des dépassements : le domaine "ouest" décroît de 40 à 10%, montrant la plus forte décroissance des seuils d'alerte sur l'ensemble de la région. La tendance décroissante reste importante sur le domaine "est" passant de 90% à 50% sur la période, même si le nombre de dépassements des normes admises reste le plus important de toute la zone Euro-Méditerranée. Enfin, la tendance est aussi à la décroissance pour le domaine "centre" mais toujours avec un cycle saisonnier très marqué : si les dépassements sont inférieurs à 10% en été, ils restent supérieurs à 40% en hiver.

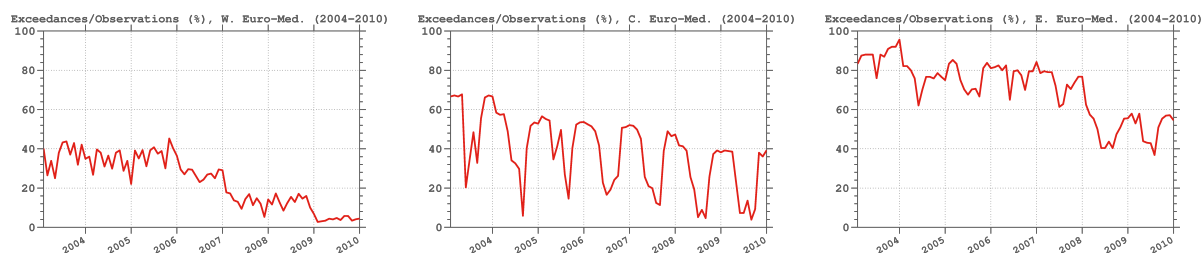


Figure 4.6 – Pourcentage du nombre de jours de dépassements de la valeur de  $50 \mu\text{g m}^{-3}$  pour chaque mois, pour les  $PM_{10}$  et pour les trois sous-régions définies.

Ces analyses ont été réalisées en gardant toutes les observations disponibles afin d'optimiser la robustesse de la statistique. Pour une analyse plus précise des tendances, une analyse basée sur exactement les mêmes stations sur toute la période serait nécessaire.

### 4.3 Propriétés optiques des aérosols

Les données de surface ont permis de caractériser l'évolution en masse des aérosols. Ces données sont importantes dans le contexte de "réglementation de la qualité de l'air", mais



n'étant qu'en surface, ne permettent pas d'approfondir l'analyse des résultats dans toute la colonne atmosphérique. Cette section présente donc une analyse des propriétés optiques des aérosols, mesurées avec les stations du réseau AERONET et par satellite avec le capteur MODIS sur le satellite AQUA. Ces données représentent la colonne atmosphérique de manière intégrée. Dans cette section, la variabilité des propriétés optiques est présentée sous deux formes différentes : la variabilité spatiale pour des valeurs moyennes sur la période de 2004 à 2010 dans la section 4.3.1 et la variabilité temporelle pour les trois sous-domaines dans la section 4.3.2.

### 4.3.1 Variabilité spatiale

Suivant la même logique que pour la variabilité spatiale des concentrations de surface, les résultats sont tout d'abord présentés sous forme de cartes moyennes (sur la période 2004 à 2010) avec les mesures AERONET, puis avec les mesures MODIS.

#### Cartes d'AOD et de coefficients d'Angstrom avec AERONET

Les cartes de mesures AERONET moyennées sur la période 2004-2010 sont présentées sur la Figure 4.7. Les deux figures du haut montrent l'épaisseur optique pour deux longueurs d'onde différentes,  $\lambda = 500 \text{ nm}$  et  $\lambda = 870 \text{ nm}$ ).

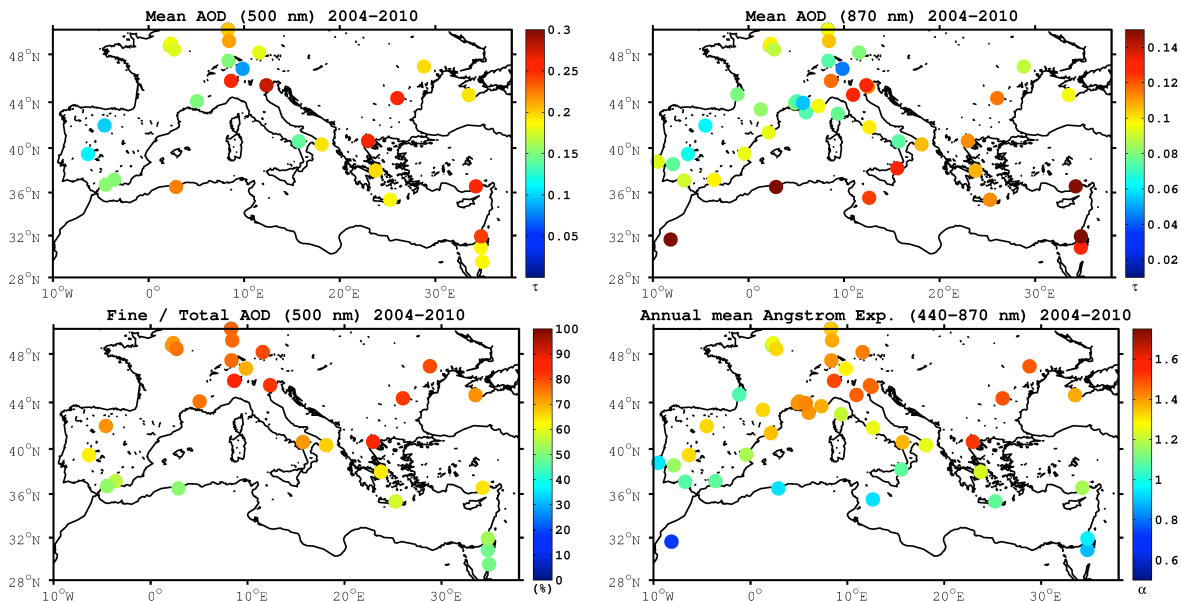


Figure 4.7 – Cartes de mesures AERONET moyennées sur la période 2004-2010 : (haut/gauche) l'épaisseur optique moyenne ( $\lambda=500 \text{ nm}$ ), (haut/droite) l'épaisseur optique moyenne ( $\lambda=870 \text{ nm}$ ), (bas/gauche), le pourcentage du mode fin par rapport à la distribution complète ( $\lambda=500 \text{ nm}$ ) et (bas/droite) l'exposant d'Angström ( $\lambda=440-870 \text{ nm}$ )

On note tout d'abord que le nombre de stations diffère entre les deux types de mesures. A  $500 \text{ nm}$ , l'AOD moyen varie de 0 à 0.3 alors que les maxima sont de 0.15 à  $870 \text{ nm}$ . Spatialement, on note que la variabilité spatiale est grande et qu'il n'y a pas de signal d'épaisseur optique plus forte que la moyenne sur une région isolée. Les valeurs sont très variables spatialement et montrent encore que la grande variabilité de types de sources

(anthropiques, naturelles) et donc de distribution en taille, crée une grande variabilité des moyennes spatiales.

Le pourcentage de l'AOD du mode fin sur l'AOD totale (Figure 4.7(bas/gauche)) permet d'identifier une spatialisation des valeurs : les valeurs sont inférieures à 50% pour les latitudes inférieures à 40°N et majoritairement supérieures à 50% pour les latitudes supérieures. On note donc une prédominance des aérosols en mode grossier au Sud du domaine et sur tout le pourtour Méditerranéen et des aérosols plus fins au Nord du domaine.

La carte de coefficient d'Angström apporte une information aussi très claire sur les parts relatives entre mode fin et mode grossier de l'aérosol sur cette région Euro-Méditerranée. On retrouve un gradient nord-sud très marqué avec des valeurs systématiquement inférieures à 1 au sud de la latitude 40°N (aérosols dans le mode grossier principalement) et des valeurs supérieures à 1 au nord de cette latitude.

Ces différents indicateurs montrent que les différentes sources d'émissions, naturelles au sud et anthropiques au nord ont une très forte signature spatiale à la fois en concentrations en masse et en propriétés optiques. On relève une **latitude de changement de "propriétés optiques" clairement autour de 40°N** c'est à dire la séparation entre Afrique du Nord et Europe du Sud, régions nettement moins industrialisées que l'Europe du Nord.

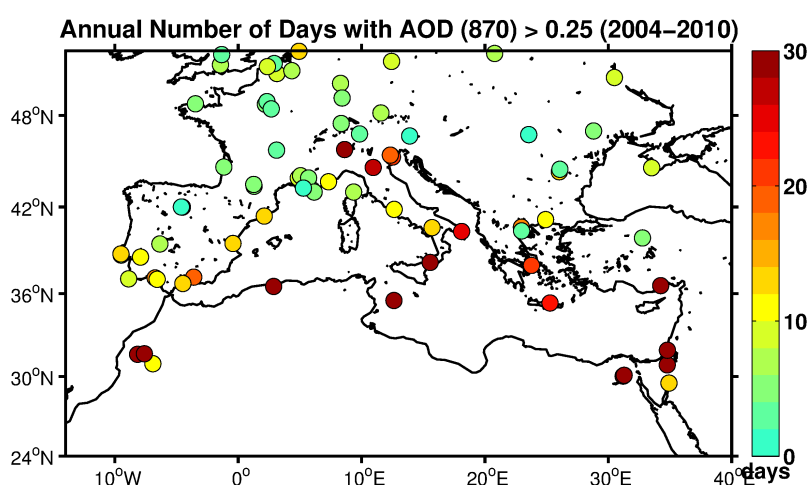


Figure 4.8 – Nombre moyens de jours/an où l'AOD (870 nm) dépasse la valeur de 0.25.

Afin d'évaluer la fréquence des valeurs maximales d'épaisseur optique, la Figure 4.8 présente une carte de nombre de jours où l'AOD dépasse la valeur de 0.25 (pour la longueur d'onde  $\lambda=870\text{ nm}$ ). Pour chaque année, le nombre de jours de dépassement est estimé. Pour chaque station, ces nombres de jours par année, de 2004 à 2010, sont moyennés pour n'afficher qu'une seule valeur sur la carte. On n'obtient pas cette fois un gradient latitudinal très marqué mais, au contraire, des valeurs importantes autour du bassin Méditerranéen : on estime que l'AOD peut être supérieur à 0.25 jusqu'à 30 jours par an en Italie du Sud, Maghreb et tout le bassin est Méditerranéen (de la Grèce à l'Egypte). Les valeurs sont plus faibles sur le continent où les valeurs sont autour de 10 jours/an de dépassement.

Ce mode de comptage des très fortes valeurs d'AOD va privilégier les événements extrêmes. En région Euro-Méditerranée, ces extrêmes correspondent principalement à des panaches denses d'aérosols minéraux et de feux. La Figure 4.8 permet bien de localiser ces panaches, souvent observés sur le pourtour Méditerranéen, et permet donc ici de quantifier la part relative de ces événements par rapport à l'ensemble des sources d'aérosols : si la

pollution anthropique peut conduire à une dizaine de jours par an où l'épaisseur optique dépasse 0.25, les événements extrêmes de panaches denses (feux et dust) peuvent conduire à 3 fois plus de jours où l'AOD est supérieur à 0.25.

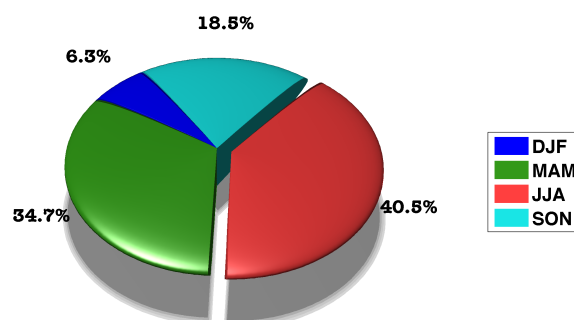


Figure 4.9 – Distribution saisonnière des nombres de jours par an (moyennés sur la période 2004-2010) où l'AOD est supérieur à 0.25.

La Figure 4.9 reprend le même type de comptage que la Figure 4.8 mais cette fois en conservant l'information sur la saison et en calculant la moyenne sur tout le domaine des jours de dépassement, saison par saison. La plus grande partie de ces dépassements est observée en été (les mois JJA) avec 40.5% des valeurs calculées. Les valeurs de printemps (MAM) et d'automne (SON) montrent des pourcentages encore relativement importants mais plus faibles (34.7% et 18.5%, respectivement). Enfin, le nombre de jours de dépassement ( $AOD > 0.25$ ) est très faible en hiver (DJF) avec seulement 6.3%. Sachant que les événements extrêmes comme les feux et les aérosols minéraux sont prépondérants en période estivale, on a donc ici une quantification des impacts sur la distribution annuelle des fortes valeurs d'épaisseurs optiques. On peut donc noter que **les plus fortes valeurs d'épaisseur optique sont observées une fois sur deux en été et principalement autour du bassin Méditerranéen.**

La Figure 4.10 présente des distributions en taille des concentrations massiques d'aérosols, mesurées avec le réseau de photomètres AERONET. On retrouve sur ces stations l'information déduite précédemment : les concentrations d'aérosols ( $PM_{10}$ ) montrent les plus fortes concentrations en été et les plus faibles en hiver. Cela montre que les trois stations choisies sont bien représentatives des trois sous-domaines étudiés précédemment. Pour les trois stations présentées, on note que l'aérosol est principalement composé de deux modes : un mode fin centré sur le diamètre médian  $D_p = 0.2 \mu m$  et un mode grossier centré sur  $D_p = 2$  à  $3 \mu m$ .

Pour la station du sous-domaine "ouest", la station de Blida, localisée en Algérie va principalement représenter l'aérosol minéral près de sa source d'émission : on a donc un mode grossier dominant et des concentrations importantes dans les deux modes. Pour le domaine "est", la tendance contraire est observée : on a ici un mode fin dominant, ainsi qu'un mode grossier un peu décalé vers des diamètres d'aérosols plus importants,  $D_p = 4 \mu m$ . Les concentrations en elle-mêmes sont aussi deux fois plus faibles que celles observées sur le domaine "ouest". Enfin, le domaine "centre" montre aussi une distribution en taille différente avec des modes "fin" et "grossiers" de même intensité. On notera que pour les saisons MAM (printemps) et SON (automne), le mode fin devient dominant par rapport au mode grossier, même si les concentrations sont faibles. Finalement, ces valeurs moyennes montrent que **la distribution en taille évolue énormément en fonction de la longitude autour du bassin Méditerranéen, avec un mode grossier dominant**

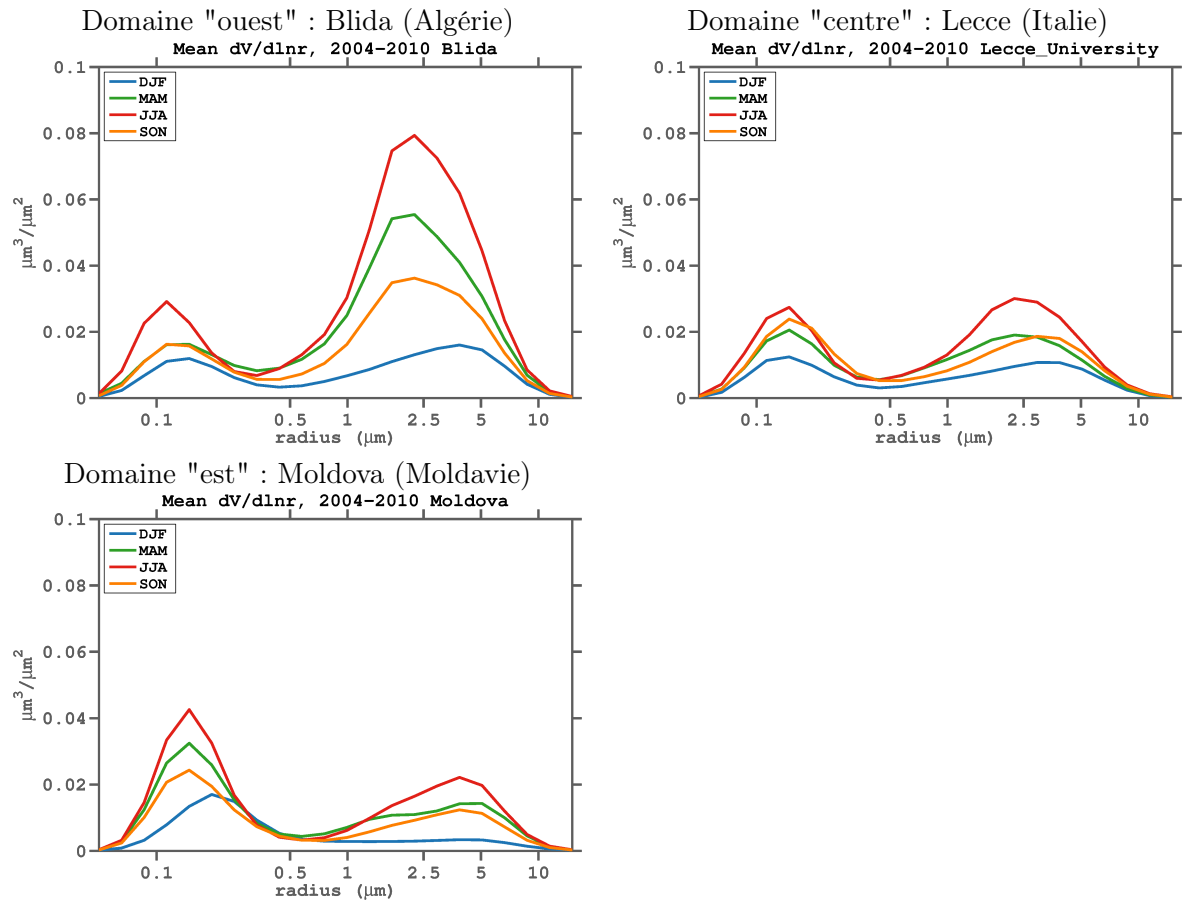


Figure 4.10 – Distributions en taille des aérosols mesurés par AERONET et pour des stations représentatives des trois sous-domaines étudiés : Blida (Algérie) pour le domaine "ouest", Lecce (Italie) pour le domaine "centre" et Moldova (Moldavie) pour le domaine "est". Les distributions en taille correspondent aux valeurs moyennées sur la période de 2004 à 2010 et pour chaque saison.

à l'ouest, un mode fin à l'est et une distribution équilibrée entre mode fin et grossier au centre.

### Cartes d'AOD moyens et saisonniers avec MODIS

De manière complémentaire aux observations AERONET, une étude statistique est présentée avec les données du capteur MODIS sur le satellite AQUA. Les données utilisées ici sont les épaisseurs optiques à la longueur d'onde de 550 nm. Elles sont moyennées, par saison, sur l'ensemble des données disponibles sur la période 2004 à 2010.

La Figure 4.11 présente ces valeurs moyennes et montre que les maxima observés par satellite sont au printemps et en été, majoritairement sur le pourtour Méditerranéen (sources de dust et de feux). On note aussi de fortes valeurs en Italie dans la plaine du Pô. Cette source est anthropique et industrielle et montre donc une persistance dans le temps de fortes valeurs d'AOD, avec des valeurs moyennes supérieures à 0.25. Les autres maxima, liés à des production naturelles (de dust et de feux) ont des valeurs d'AOD plus fortes ( $0.25 < AOD < 0.5$ ) mais uniquement sur les mois d'été.

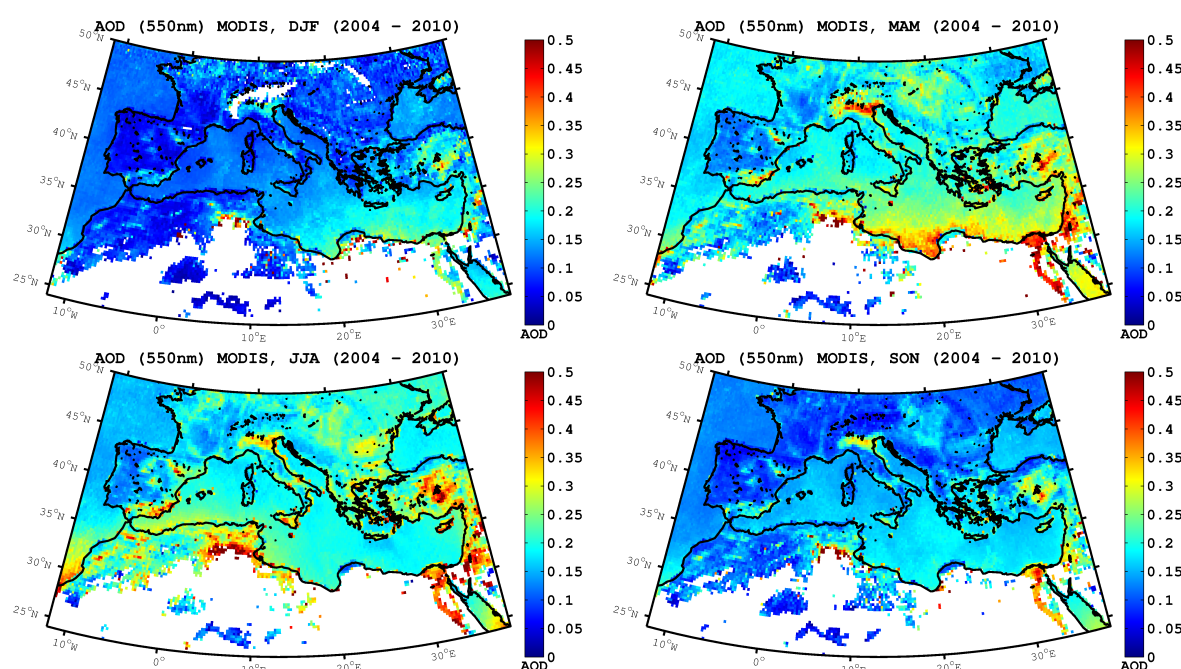


Figure 4.11 – Distribution spatiale de l'AOD moyen MODIS (550 nm) par saison, sur l'ensemble de la période 2004 à 2010.

En complément des données des stations AERONET, l'analyse de ces données satellitaires montre que les fortes valeurs d'épaisseurs optiques sont au dessus de la mer, notamment en été où des valeurs d'AOD supérieures à 0.4 sont observées sur toute la cote sud-est de la Méditerranée (du Maghreb à l'Egypte).

### 4.3.2 Variabilité temporelle

Après la variabilité spatiale, nous analysons ici la variabilité temporelle des propriétés optiques des aérosols. La Figure 4.12 montre l'épaisseur optique déduite des mesures des photomètres AERONET pour les longueurs d'onde  $\lambda = 500 \text{ nm}$  et  $\lambda = 870 \text{ nm}$ . Contrairement aux mesures de surface, on ne note pas de différence marquée en terme de valeurs d'épaisseur optique entre les 3 domaines. Les valeurs varient de 0.1 à 0.5 en fonction du mois de l'année. De plus, le cycle saisonnier est aussi beaucoup plus marqué. A l'inverse des concentrations de surface, on a maintenant des valeurs maximales observées pendant les périodes estivales, et ce pour les deux longueurs d'onde. Sur l'ensemble de la période, il n'y a pas de tendance décroissante comme pour les mesures massiques.

Les différences de variabilité entre concentrations massiques et épaisseurs optiques peuvent s'expliquer par différentes voies :

- **La quantité d'aérosols représentée** : alors que la concentration massique ne permet d'avoir accès qu'à une information en surface, l'épaisseur optique est déduite des concentrations intégrées sur toute la colonne atmosphérique. Il n'y a donc pas, a priori, de relation directe entre ces deux grandeurs. Cependant, dans le cas de pollution anthropique, émise à la surface, on peut s'attendre à des corrélations fortes entre concentrations et AOD. Par contre, dans le cas de transport à longue distance de panaches denses, on peut avoir de fortes concentrations en altitude, et donc de fortes épaisseurs optiques, sans avoir de valeurs fortes en surface. Pour aller plus loin dans la discussion sur ce

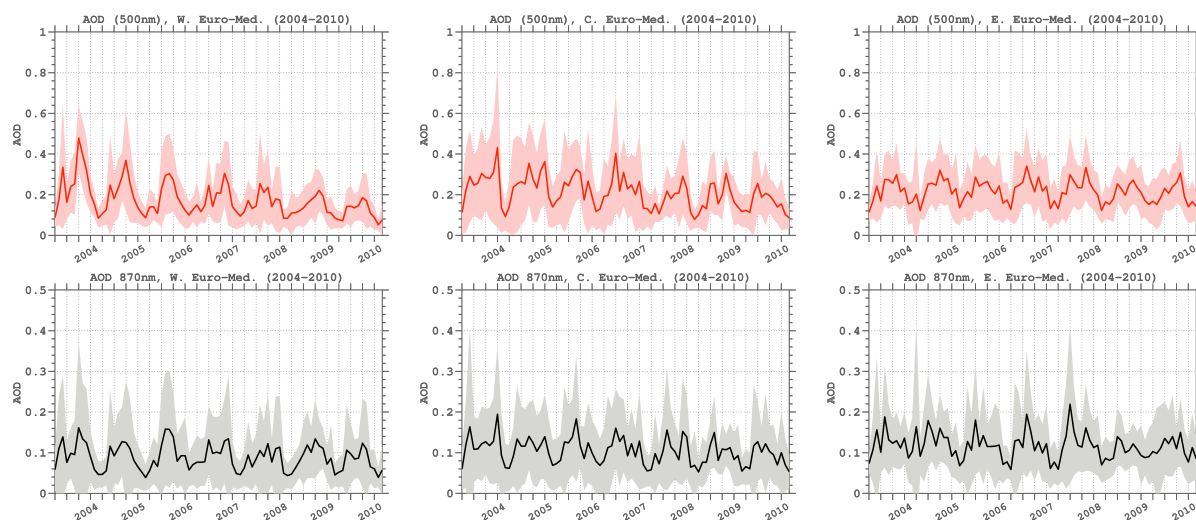


Figure 4.12 – Mesures de l'épaisseur optique réalisées par les stations AERONET. Les longueurs d'onde sont  $\lambda=500$  nm(haut) et  $\lambda=870$  nm(bas). Les valeurs sont présentées en moyenne mensuelle pour chacun des trois sous-domaines "ouest", "centre" et "est".

point, il faut avoir accès aux profils verticaux, ce qui n'est pas le cas avec les mesures présentées ici. Mais cela pourra être analysé et discuté par la suite avec les résultats de modélisation.

- **Le principe de la mesure** : des différences peuvent être liées à une comparaison de deux mesures différentes sur le principe. La mesure en surface est basée sur une mesure sèche sur filtre alors que l'épaisseur optique est basé sur une atténuation du rayonnement. Chacun des deux principes possède une incertitude propre (au minimum de l'ordre de 10%) et difficilement quantifiable.
- **La distribution en taille** : alors que la masse représente l'intégralité de la distribution en taille, l'épaisseur optique ne représente que la partie de la distribution en taille optiquement active pour la longueur d'onde choisie. L'AOD va donc être plus particulièrement la signature d'une partie de la distribution en taille. On va donc avoir une signature qui peut aussi se rapprocher du type de source d'aérosols en fonction de la part relative occupée dans la distribution en taille.

Toujours sur la Figure 4.12, on note que la variabilité d'un mois à l'autre est très proche pour les mesures à deux longueurs d'onde différentes. Cela montre que ces deux longueurs d'onde représentent la même partie du spectre de la distribution en taille des aérosols. On note cependant une différence d'écart-type entre les AOD à 500 et 870 nm, avec une plus grande variabilité pour les épaisseurs optiques à 870 nm.

La Figure 4.13 présente des valeurs mensuelles d'AOD mesurées avec le capteur MODIS et pour une longueur d'onde  $\lambda = 550$  nm. La comparaison directe entre les AOD à 500 nm d'AERONET et à 550 nm de MODIS nous renseignent sur les différences de principe de mesures entre capteurs : alors que les mesures AERONET sont horaires et régulières en temps, mais ponctuelles en espace, les mesures satellites sont irrégulières en temps (e.g. couverture limitée en présence de nuages) mais couvrent spatialement de plus grandes parties du domaine d'étude.

Comme pour les mesures AERONET, la variabilité inter-annuelle, de 2004 à 2010, ne montre pas de tendances sur le long terme. Le cycle annuel est nettement plus marqué qu'avec les mesures AERONET, avec des minimum et maximum observés de valeurs 0.1



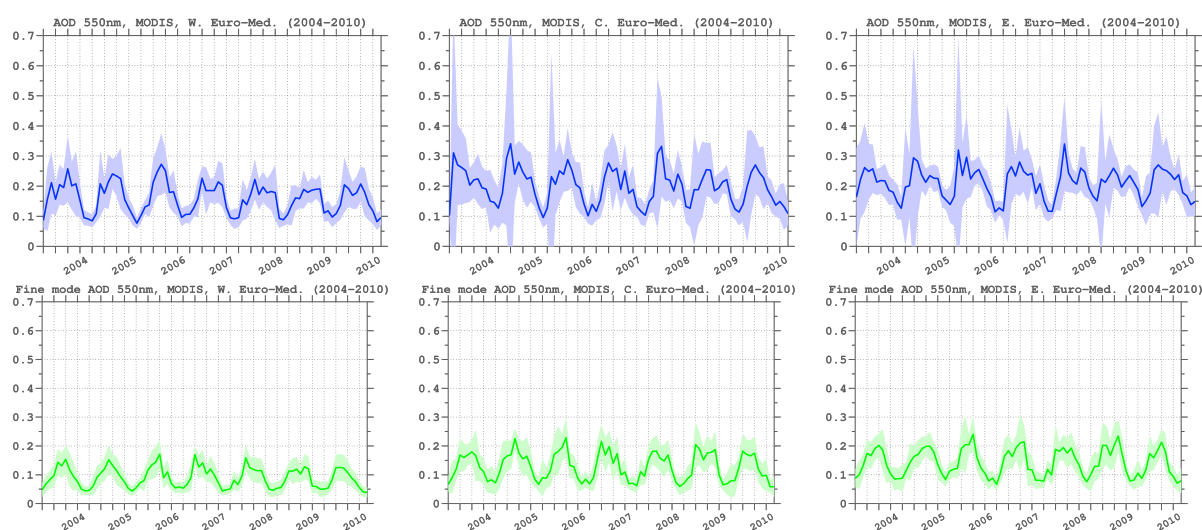


Figure 4.13 – Mesures de l'épaisseur optique (*[haut]* le total et *[bas]* le mode fin uniquement) réalisées par le capteur MODIS (longueur d'onde  $\lambda=550\mu\text{m}$ ) et en moyenne mensuelle pour chacun des trois sous-domaines "ouest", "centre" et "est".

à 0.4. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que les mesures AERONET. On note que les écart-types pour ces mesures sont nettement plus importants que pour les mesures AERONET, montrant une variabilité dans la mesure plus grande (variabilité spatiale sur la région et temporelle sur le mois).

Cette analyse a pu montrer que sur la période d'étude, il n'y a pas de tendance de décroissance comme cela avait été observé sur les concentrations massiques de surface. Cette différence met donc en avant que l'on a pu analyser par l'observation que les concentrations en particules en surface d'origine anthropique en surface ont vues leurs émissions réduites sur cette dernière décennie, mais que cette baisse des émissions ne domine pas le signal optique. Il y'a plusieurs explications à cela :

- A la longueur d'onde proposée par les instruments (500, 550 ou 870 nm), les particules anthropiques ne sont pas dominantes dans la classe de taille correspondante et donc une légère décroissance en masse ne change pas significativement les valeurs de l'épaisseur optique.
- La variabilité mensuelle de l'épaisseur optique reste supérieure à la valeur absolue de la tendance décroissante des concentrations d'aérosols : on ne peut donc pas dégager un signal clair de décroissance de quantité d'aérosols en utilisant leurs propriétés optiques. Cette conclusion est importante car montre que les études d'impact à long terme sur les aérosols ne pourront pas utiliser uniquement des propriétés optiques mais aussi des mesures en masse.
- Même si les concentrations liées aux activités anthropiques sont en décroissance cette dernière décennie, ce n'est pas le cas des aérosols issus des feux et des aérosols minéraux qui sont transportés en panache dense au-dessus de la région Euro-Méditerranée. Ce sont ces panaches en altitude qui dominent le signal que l'on a étudié en épaisseur optique.

### 4.3.3 Conclusions

Dans ce chapitre, de nombreuses observations ont été analysées sur la période couvrant les années 2004 à 2010. Pour synthétiser l'ensemble des résultats, des zones moyennes

ont été définies, respectant à la fois la quantité de données disponibles, leur spatialisation ainsi que les régions d'émission connues et les transports principaux de panaches d'aérosols minéraux et de feux.

Pour les mesures des stations de surface, il a d'abord été montré que les stations AIR-BASE disponibles en Europe présentaient encore de grandes hétérogénéités spatiales, pouvant biaiser les conclusions statistiques faites sur les valeurs de concentrations : si le réseau est historiquement très fourni du côté "ouest" de la zone Euro-Méditerranée, le nombre de mesures disponibles à l'est sont principalement des mesures de  $PM_{10}$  en milieu urbain. De plus, cette région propose 4 à 5 fois moins de mesures que les zones "ouest" et "centre". Il a été montré que les plus fortes concentrations en Europe étaient relevées en hiver, et principalement localisées en Italie du Nord et à l'est de la région. La variabilité saisonnière a montré qu'il n'y avait jamais de régions sans dépassement du seuil réglementaire Européen. Une tendance à la baisse des concentrations moyennes a pu être analysée pour tous les trois domaines. Le domaine "centre" montre, de plus, une plus grande variabilité des concentrations moyennes d'une saison à l'autre.

Les mesures du réseau AERONET ont permis de tirer des conclusions pour les signatures optiques des aérosols. On retrouve en terme d'épaisseur optique les zones où les concentrations sont en moyenne les plus importantes. L'AOD permet, en plus, de mettre en évidence une séparation claire de part et d'autre de la latitude  $40^{\circ}N$  : au sud de cette limite, les valeurs moyennes sur 7 ans dépassent rarement 0.2 alors qu'au Nord, les valeurs d'AOD sont comprises entre 0.2 et 0.3. De plus, l'analyse selon différentes longueurs d'onde et en discriminant le mode fin de l'ensemble du spectre de taille a pu montrer que la partie fine de la distribution en taille n'excède jamais 50% au sud de cette latitude, alors qu'elle est majoritairement supérieure à 50% au nord de cette latitude. On a pu ainsi quantifier la prédominance des aérosols dans le mode grossier en Europe du Sud (contribution naturelle principalement) et, au contraire, la prédominance des aérosols fins plus on va vers le nord de l'Europe (impact des émissions anthropiques devenant dominant dans le bilan).

En analysant les occurrences des valeurs maximales de valeurs d'AOD, il a été aussi montré que les événements extrêmes de panaches denses (feux et dust) pouvaient conduire à trois fois plus de jours où l'AOD est supérieur à 0.25. Finalement, il a été montré que les plus fortes valeurs d'épaisseurs optiques sur l'ensemble de la région étaient une fois sur deux observées juste autour du bassin Méditerranéen et pas sur le continent.

Un effet longitudinal a aussi été analysé et il a été montré que la distribution en taille de l'aérosol évolue fortement de l'ouest vers l'est : on a ainsi pu caractériser un mode grossier à l'ouest, un mode fin à l'est et une distribution bi-modale équilibrée entre mode fin et grossier au centre du domaine.

D'un point de vue variabilité temporelle, et contrairement aux mesures de concentrations en surface, l'AOD ne montre pas de tendance à la décroissance sur la période 2004 à 2010. D'autre part, alors que les maxima de concentrations de surface sont dominants en hiver, les maxima d'épaisseurs optiques sont observés en été.

On a donc pu mettre en évidence une décroissance apparente des concentrations en aérosols en surface, directement liée à une décroissance des activités anthropiques. Mais les valeurs d'AOD, représentatives de toute la colonne atmosphérique, indiquent que la variabilité des aérosols est plus importante dans la colonne atmosphérique qu'en surface, cela étant directement à relier au transport d'aérosols issus d'émissions sporadiques et intenses de feux et d'aérosols minéraux.





Comme nous l'avons vu précédemment, ce travail de thèse s'appuie sur la synergie entre modélisation et observations. Les observations satellitaires par télédétection passive ou active sont particulièrement intéressantes pour les études à l'échelle régionale puisqu'elles apportent une meilleure couverture spatiale que les observations depuis les réseaux d'observations au sol. La télédétection, comme il a été rappelé brièvement dans le [Chapitre 3](#), repose sur l'interaction entre aérosols et rayonnement (pour notre application ici). Elle fournit donc une mesure des propriétés optiques des aérosols. Cependant, en sortie d'un modèle de chimie-transport nous obtenons des champs de concentration des polluants. L'exploitation des observations nécessite donc un outil pour la simulation des paramètres optiques directement comparables aux produits de télédétection. Plus spécifiquement, les principales données utilisées, et qui doivent donc être calculées à partir des simulations sont l'épaisseur optique des aérosols (AOD ou  $\tau$ ), le coefficient d'Angström ( $\alpha$ ) et le signal lidar ( $R, \chi$ ).

Par conséquent, la première étape de ce travail a consisté au développement d'un logiciel (OPTSIM) pour la simulation des paramètres optiques des aérosols, à partir d'un code optique initialement disponible au LMD (e.g. [Hodzic et al., 2007](#); [Péré et al., 2009](#)). Il a tout d'abord été réorganisé et optimisé pour améliorer son efficacité (réduire le temps de calcul) et son adaptabilité. En visant plus loin qu'une comparaison 2D des paramètres intégrés sur toute la colonne atmosphérique, traditionnellement utilisés pour la validation des modèles, j'ai ajouté le calcul du signal lidar à partir des champs de concentration simulés et des paramètres météorologiques.

Les observations lidar de l'instrument CALIOP à bord du satellite CALIPSO (cf [Chapitre 3](#)) sont de plus en plus employées pour évaluer la qualité des simulations par les CTMs (e.g. [Yu et al., 2010](#); [Ford and Heald, 2012](#); [Ridley et al., 2012](#)). Ces études utilisent les observations de niveau 2 (L2), les coefficients d'extinction et de rétrodiffusion ( $\alpha'$  et  $b'$  respectivement), qui sont déterminés à partir du signal effectivement mesuré par l'instrument, le signal rétrodiffusé atténué ( $\beta'$  de niveau 1B, après calibration) grâce à des algorithmes d'inversion. Ces méthodes sont en constante évolution et permettent d'avoir une vision directe des distributions en aérosols. Cependant, elles sont également sujettes à des incertitudes qui rendent leur utilisation pour la validation des CTMs difficile. Un paramètre clé pour le calcul des L2 est le rapport extinction sur rétrodiffusion (rapport lidar). Les valeurs utilisées sont basées sur des distributions en taille bi-modales et des indices de réfraction moyens pour chaque type d'aérosol. Des erreurs importantes sont donc constatées dans le cas d'une mauvaise classification du type d'aérosol ([Young and Vaughan, 2009](#)) : par exemple si une couche dense d'aérosols est confondue avec un nuage ([Liu et al., 2009](#)) ou si une couche de poussières minérales est injustement considérée comme des poussières polluées ([Omar and al, 2009](#)).

L'alternative que nous proposons est donc d'éviter l'utilisation des L2 et de directement comparer les simulations aux L1B. Cela évite par ailleurs les incohérences entre les classifications du type d'aérosol dans les simulations et dans le processus d'inversion. Pour cela, nous simulons ce qu'un lidar embarqué sur un satellite mesurerait s'il volait au-dessus d'une atmosphère semblable à celle prédite par le modèle. OPTSIM permet ainsi le cal-

cul à partir des sorties de CTM des données lidar L1B (pour un lidar dans l'espace ou au sol) en plus des données L2. Cette approche a déjà été utilisée pour l'intercomparaison d'observations lidar aéroportées avec les observations CALIOP (de Villiers et al., 2010), pour la comparaison d'observations lidar sol avec des simulations de modèles (Hodzic et al., 2004), pour la comparaison entre observations CALIOP et simulations des nuages (Chepfer et al., 2008) ou des poussières minérales (Vuolo et al., 2009). Nous généralisons ici cette approche à l'ensemble des aérosols simulés pour l'étude de climatologies ou d'événements de transport.

OPTSIM est donc un outil de comparaison complet qui permet d'optimiser l'information qui peut être déduite des observations satellitaires actuellement disponibles. Nous montrerons dans les illustrations de ce chapitre et dans le chapitre suivant que ce type d'analyse permettra une évaluation des simulations de modèles en termes d'émissions, de transport (distributions horizontales et verticales des aérosols), mais également une évaluation de la taille des particules. De plus, OPTSIM a été développé de manière flexible pour être facilement utilisable avec des simulations d'autres modèles de chimie-transport.

Dans cette section, je détaille le principe de fonctionnement d'OPTSIM et présente sa validation sur un cas académique. Afin d'illustrer l'intérêt de cet outil sur un cas réel, je présente ensuite une application à l'étude d'un événement de transport de poussières désertiques pendant l'été 2007. Ce travail fait l'objet d'un article intitulé *Lidar Signal Simulation for the Evaluation of Aerosols in Chemistry-Transport Models*, publié dans le journal *Geoscientific Model Development* en 2012 (cf Annexe).

## 5.1 Principe du simulateur OPTSIM

Le principe de fonctionnement du simulateur OPTSIM est schématisé sur la Figure 5.1. A partir des champs de concentrations simulés par le CTM (par exemple CHIMERE), OPTSIM permet de :

1. Calculer les propriétés et paramètres optiques des aérosols : indice de réfraction, coefficients d'extinction et de diffusion, fonction de phase (en rétrodiffusion plus particulièrement pour une observation satellitaire) ;
2. Calculer l'épaisseur optique (couche par couche), le coefficient d'Angström pour la comparaison aux observations L2 par les capteurs passifs ;
3. Simuler les observations lidar (au sol ou embarqué sur satellite) de niveau 1 ( $\beta'$ ,  $R'$ ,  $\chi'$ ) et de niveau 2 (coefficients d'extinction et de rétrodiffusion).

Dans sa version actuelle, deux hypothèses sont faites dans OPTSIM : que les particules peuvent être considérées comme sphériques et que la diffusion multiple est négligeable. L'incertitude associée à chacune de ces hypothèses est évaluée dans la section Section 5.3.

Comme indiqué en introduction, la valeur ajoutée de cet outil par rapport aux outils de calculs de propriétés optiques déjà existants est la simulation de données lidar de niveau 1 (L1).

### 5.1.1 Simulation des paramètres optiques des aérosols

La capacité d'une particule à atténuer le signal est représentée par l'indice de réfraction  $\eta$ . C'est donc la première propriété à calculer, pour l'ensemble de particules prises en compte par le modèle. L'indice  $\eta$  est directement lié à la composition chimique de l'aérosol

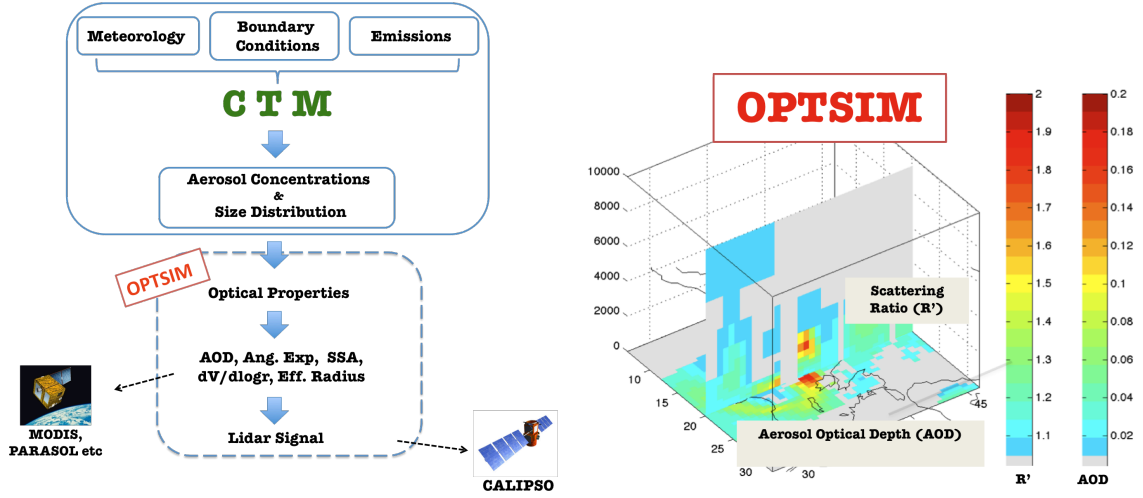


Figure 5.1 – Représentation schématique du principe de fonctionnement de l'outil de comparaison OPTSIM.

et à l'humidité relative, ainsi qu'à la longueur d'onde ( $\lambda$ ) du rayonnement interagissant avec cette particule (cf Section 3). Dans OPTSIM, nous considérons que les aérosols sont mélangés d'une manière interne en distinguant deux types de mélange : homogène et "core-shell" (cf Section 2).

Pour calculer cet indice, l'algorithme discrétise plus finement la distribution en taille des aérosols initialement calculés par CHIMERE. Par exemple, si on a 8 sections de taille (*bins*) initialement dans le CTM, on pourra passer à une distribution à 40 sections de taille. Comme l'extinction est très sensible à la taille de l'aérosol, le fait de discrétiser plus finement la distribution permet de préciser plus en détail la gamme de taille où l'aérosol est optiquement actif. Ensuite, la masse des aérosols est redistribuée (interpolation log-normale) dans les 40 sections de taille à partir de la fraction massique de chaque espèce chimique dans la section de taille considérée. Le choix du nombre final de sections est un compromis entre la précision numérique souhaitée et le temps de calcul.

L'indice de réfraction du mélange est ensuite défini comme la somme des indices de chaque espèce chimique (e.g. nitrate, sulfate, carbone suie, poussière)  $\eta_i$  pondérée par leur fraction volumique  $f_i$  (Lesins et al., 2002).

$$\bar{\eta} = \sum_{i=1}^{N_{esp}} f_i \eta_i \quad (5.1)$$

De manière analogue, on calcule la densité de l'ensemble de particules. Enfin, il faut noter que l'effet de l'humidité relative sur la taille des particules est pris en compte à l'aide des relations de Hänel (cf Section 2). Les indices de réfraction et la densité de chaque espèce chimique utilisés pour calculer les propriétés optiques des aérosols dans OPTSIM sont indiqués dans le Tableau 5.1.

Le calcul des propriétés optiques (e.g. efficacité d'extinction, de diffusion, albédo de diffusion simple) est ensuite réalisé, en utilisant la théorie de Mie (sous l'hypothèse de particules sphériques). Pour le cas d'un ensemble mélangé de manière homogène, les propriétés optiques sont calculées selon le code décrit dans De Rooij and Van der Stap (1984). Pour le cas d'un mélange du type "core-shell" nous utilisons un code numérique pour un aérosol à deux couches (Toon and Ackerman, 1981) avec un noyau constitué des espèces primaires

Espèce	Refractive index	
	532 nm	1064 nm
OCAR	$1.63 - 2.32 \cdot 10^{-2}i$	$1.63 - 7.0 \cdot 10^{-4}i$
BCAR	$1.85 - 7.10 \cdot 10^{-1}i$	$1.85 - 7.10 \cdot 10^{-1}i$
DUST	$1.53 - 1.20 \cdot 10^{-3}i$	$1.53 - 7.74 \cdot 10^{-4}i$
SOA	$1.56 - 3.0 \cdot 10^{-3}i$	$1.56 - 3.0 \cdot 10^{-3}i$
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	$1.44 - 1.0 \cdot 10^{-8}i$	$1.42 - 1.64 \cdot 10^{-6}i$
HNO <sub>3</sub>	$1.61 - 0i$	$1.59 - 1.8 \cdot 10^{-5}i$
NH <sub>3</sub>	$1.53 - 1.0 \cdot 10^{-7}i$	$1.51 - 2.35 \cdot 10^{-6}i$
SALT	$1.50 - 1.20 \cdot 10^{-8}i$	$1.47 - 1.97 \cdot 10^{-4}i$
H <sub>2</sub> O*	$1.333 - 1.9 \cdot 10^{-9}i$	$1.326 - 4.18 \cdot 10^{-6}i$

Tableau 5.1 – Liste des indices de réfraction et de la densité de chaque espèce chimique (pour  $\lambda = 532$  nm et 1064 nm) utilisés pour calculer les propriétés optiques des aérosols dans OPTSIM. Source : Rapport technique ADIENT/APPRAISE (<http://www.met.reading.ac.uk/adient/>), \*Base de données HITRAN (Rothman et al., 2009).

(OCAR, BCAR, DUST) enrobé des espèces secondaires (e.g. sulfates, nitrates). Ensuite, le coefficient d'extinction  $\sigma_p^{ext}(z, \lambda)$ , exprimé en  $m^{-1}$ , d'une section de taille donnée, peut être calculé selon l'équation suivante :

$$\sigma_p^{ext}(z, \lambda) = \int_{R_{min}}^{R_{max}} \pi R^2 Q_{ext}(\eta, R, \lambda) \cdot N_p(R, z) dR \quad (5.2)$$

où  $Q_{ext}$  est l'efficacité d'extinction dépendant de l'indice de réfraction  $\eta$  et de la longueur d'onde ( $\lambda$ ),  $R$  (en  $m$ ) le rayon et  $N_p$  (en  $m^{-3}$ ) la concentration en nombre de particules.

L'incertitude dans cette étape du code est liée au fait que les propriétés optiques des aérosols dépendent de plusieurs paramètres tels que la forme, la composition et le type de mélange des particules.

Nous rappelons que l'épaisseur optique d'une couche d'aérosols, ( $\tau$ , sans unité), est définie comme l'intégrale du coefficient d'extinction  $\sigma_{ext}(\lambda, z)$  sur la hauteur de la couche  $\Delta z$  :

$$\tau(\lambda, z) = \int_{\Delta z} \sigma_p^{ext}(\lambda, z') dz' \quad (5.3)$$

Le coefficient d'Angström peut être ensuite calculé (cf Section 3) pour les longueurs d'onde spécifiées par l'utilisateur selon le capteur choisi pour les intercomparaisons modèle-observations. Par exemple, pour nos comparaisons au coefficient d'Angström fourni par AERONET nous calculons dans OPTSIM le rapport suivant :

$$\alpha_{440-870} = -\frac{\ln(AOD_{440}/AOD_{870})}{\ln(440/870)} \quad (5.4)$$

Le choix des longueurs d'onde utilisés (ici 440 et 870 nm) se fait en entrée du simulateur.

### 5.1.2 Simulation du signal lidar

Dans cette partie, je décris plus en détail la simulation des observations lidar, qui représente la principale nouveauté d'OPTSIM. Une représentation schématique de cette méthodologie est illustrée sur la Figure 5.2. La première colonne représente une colonne du

modèle où la concentration des aérosols ( $c_i$ ) est donnée par maille pour tous les niveaux d'altitude ( $z_i$ ) du modèle. Cela peut être exprimé par un profil de concentration où  $c_i$  représente la concentration moyenne entre  $z_{i-1}$  et  $z_i$  ( $z_0$  signifie la surface). A partir de ce profil, on simule le signal qui serait observé par un lidar spatial (3ème colonne) ou sol (4ème colonne).

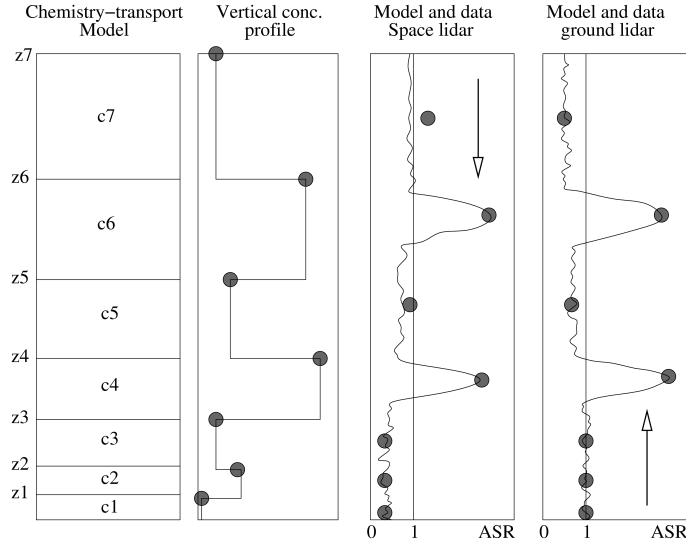


Figure 5.2 – Représentation schématique de la méthodologie de simulation du signal lidar. De gauche à droite : Concentration modélisée pour une maille du modèle et profil de concentration correspondant. A partir de ce profil, les valeurs de  $R'$  correspondantes sont calculées pour le cas d'un lidar spatial ou au sol. Les points gris correspondent aux valeurs de concentration simulée.

Le calcul du signal lidar à partir des champs de concentration simulés requiert des paramètres supplémentaires que ceux utilisés pour l'AOD. Ces paramètres, principalement météorologiques, sont indiqués dans le [Tableau 5.2](#).

Variable	nom et dimensions		Unité
Temps	Time	$(N_{obs})$	heures
Longitude	lon	$(N_{obs})$	degrés
Latitude	lat	$(N_{obs})$	degrés
<i>Météorologie</i>			
Température	temp	$(N_{obs} \times N_z)$	K
Densité de l'air	airmloc	$(N_{obs} \times N_z)$	molécules/cm <sup>3</sup>
Humidité Relative	rh	$(N_{obs} \times N_z)$	%/100
Altitude	hlay	$(N_{obs} \times N_z)$	mètres
<i>Composition atmosphérique</i>			
Concentration	conc	$(N_{obs} \times N_z \times N_b)$	µg/m <sup>3</sup>
Diamètre de coupure	cut_off_diameters	$(N_b)$	mètres

Tableau 5.2 – Liste des paramètres requis en entrée du simulateur OPTSIM pour la simulation du signal lidar.  $N_z$  représente le nombre de couches d'altitude,  $N_b$  le nombre de sections de taille et  $N_{obs}$  le nombre de profils à traiter.

Pour plus de flexibilité et d'efficacité en termes de temps de calcul, OPTSIM est construit pour traiter une série de profils. Comme l'une des applications principales est la comparaison à des observations satellitaires ou surface, un pré-processeur est utilisé pour collocaliser les sorties de simulations aux observations, avec des critères définis en termes d'espace ( $\pm 0.25^\circ$  par défaut) et de temps ( $\pm 30 \text{ min}$  par défaut), et extraire les champs modèles pertinents le long de ces trajectoires.

## 5.2 Validation sur un cas académique

Afin de vérifier chaque étape du calcul on considère des conditions atmosphériques simplifiées : une seule espèce chimique avec une concentration constante placée uniquement dans l'une de huit sections de taille (bins) initiales à la fois. Les espèces chimiques considérées sont le carbone suie (*BCAR*) et la poussière minérale (*DUST*). La différence principale entre ces deux espèces concerne leur capacité à diffuser/absorber le rayonnement. Plus précisément *BCAR* est une espèce fortement absorbante alors que l'extinction du rayonnement pour le cas de poussière provient principalement de diffusion. Les particules sont considérées sphériques dans les deux cas.

L'efficacité d'extinction et de diffusion pour les deux espèces considérées (Figure 5.3) sont calculées à partir de la théorie de Mie (cf Section 3). L'évolution de ces efficacités en fonction de la taille des particules et de la longueur d'onde, déterminera le comportement des propriétés optiques des aérosols (e.g.  $Q_{ext}$ ,  $AOD$ ) et ainsi des paramètres calculés en sortie du simulateur lidar (coefficient de rétrodiffusion atténuée, rapport de diffusion et rapport de couleur).

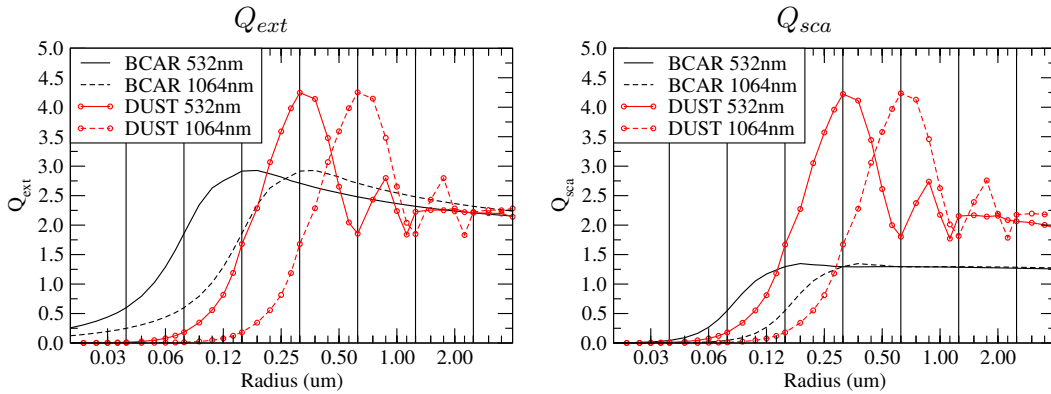


Figure 5.3 – Efficacité d'extinction et de diffusion pour les espèces considérées (*BCAR* et *DUST*) en fonction du rayon ( $R$ ) de particules et de la longueur d'onde ( $\lambda = 532, 1064 \text{ nm}$ ).

On peut voir clairement sur cette figure la plus grande diffusion par les poussières par rapport au carbone suie, ainsi qu'un maximum d'efficacité décalé vers les plus grandes gammes de taille pour les poussières.

### 5.2.1 Configuration du simulateur

Pour les tests théoriques, une concentration constante de 5 ppbv ( $\sim 17 - 20 \mu\text{g m}^{-3}$  variant avec l'altitude) est considérée dans une seule section de taille. Chaque section est testée indépendamment, en considérant au total 8 sections de taille (initialement dans le

simulateur), de 40 nm à 10  $\mu m$ . La concentration dans chaque section est redistribuée dans 5 sous-sections pour plus de précision dans le calcul des propriétés optiques (on passe ainsi d'une distributions de 8 sections à 40 sections). Verticalement, des profils sur 18 niveaux sont considérés allant de la surface à 200 hPa. La couche d'aérosols est localisée dans la basse troposphère entre  $\sim 700$  et  $\sim 1200$  m d'altitude. Cela nous permettra de valider le bon fonctionnement du simulateur et d'identifier les variations des paramètres calculés en fonction de la taille des particules.

Afin de vérifier le calcul de l'AOD, on calcule séparément l'AOD théorique pour les conditions atmosphériques considérées. On obtient un accord de 99.63 % entre l'AOD théorique et celui calculé avec OPTSIM. Le simulateur présente en moyenne un léger biais négatif (erreur de troncature). La principale source de ce biais provient de l'interpolation à 40 sections de taille qui affecte le calcul des  $Q_{ext}$  et  $Q_{sca}$ . Le choix de sections de taille est un compromis entre la précision souhaitée et le temps de calcul. Pour le cas théorique, nous avons également calculé l'AOD en utilisant une discrétisation plus fine des sections de taille (40 x  $10^5$  sections de taille). Il en résulte que la configuration du simulateur avec 40 sections de taille, induit un biais moyen de +7% pour l'AOD totale.

Section de taille	Taille	AOD		
	Diamètre ( $\mu m$ )	Théorique	simulée	Erreur (%)
1	0.039 - 0.078	0.3434	0.3467	0.9720
2	0.078 - 0.156	0.4682	0.4788	2.2726
3	0.156 - 0.312	0.5939	0.5858	-1.3714
4	0.312 - 0.625	0.3574	0.3485	-2.4892
5	0.625 - 1.250	0.1617	0.1587	-1.8692
6	1.250 - 2.500	0.0743	0.0732	-1.4374
7	2.500 - 5.000	0.0348	0.0345	-0.8607
8	5.000 - 10.00	0.0166	0.0165	-0.5518
<b>Totale</b>		<i>2.0502</i>	<i>2.0427</i>	
<b>Moyenne</b>				-0.6669

Tableau 5.3 – AOD théorique et calculée (OPTSIM) pour  $\lambda = 532$  nm par section de taille.

### 5.2.2 Aerosol optical depth

L'épaisseur optique des aérosols à 532 nm calculée pour la configuration décrite précédemment et pour chaque niveau vertical (18 au total) est présentée sur la [Figure 5.4](#). Naturellement, nous observons une augmentation de l'AOD aux niveaux d'altitude où la concentration en particules a été localisée.

Pour BCAR, la valeur maximale d'AOD ( $\tau = 0.053$ ) est atteinte quand la concentration est placée dans la 3ème section de taille (0.156 – 0.312  $\mu m$ ). Nous constatons aussi une augmentation de l'AOD plus forte ( $\tau = 0.030$ ) dans la section de taille 0.039–0.078  $\mu m$  que dans la section de taille 5–10  $\mu m$  où sa valeur maximale est  $\tau = 0.001$  (à 532 nm). La cause de cette différence est le nombre de particules ( $N$ ) qui est significativement plus élevé dans la 1ère section de taille ( $1.86 \cdot 10^{11} m^{-3}$  contre  $0.6 \cdot 10^5 m^{-3}$  pour la 8ème section de taille) pour une concentration en masse constante. Il en résulte que la valeur maximale d'AOD est décalée vers les tailles plus petites que celle correspondant au maximum d'efficacité d'extinction (0.312 – 0.625  $\mu m$  pour 532 nm). Nous retrouvons ce décalage entre la 4ème et la 5ème section de taille à 1064 nm.



De manière analogue, dans le cas de poussières minérales (*DUST*), l'AOD (à 532 nm) atteint sa valeur maximale ( $\tau = 0.019$ ) dans la 4ème section de taille ( $0.312 - 0.625 \mu m$ ) en lien avec la variation du coefficient d'extinction et du nombre de particules.

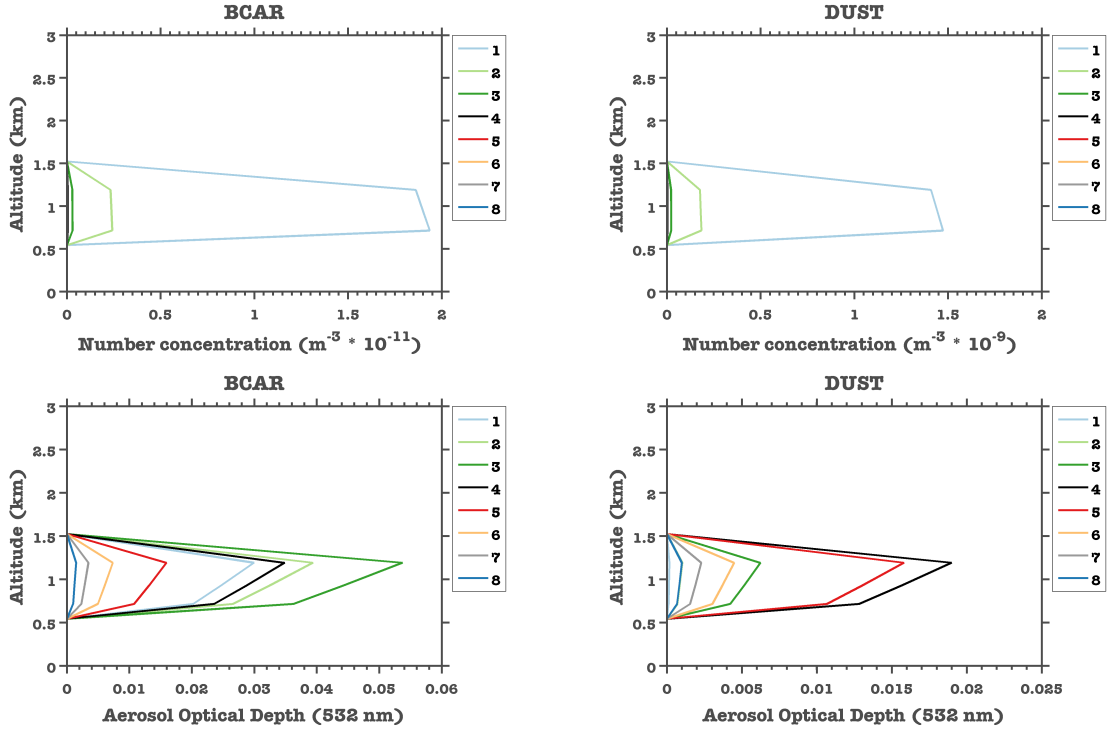


Figure 5.4 – Concentration en nombre et AOD pour *BCAR* et *DUST* par section de taille en fonction de l'altitude à 532 nm.

### 5.2.3 Coefficient de rétrodiffusion atténuée ( $\beta'$ )

Les profils de  $\beta'$  calculés pour ce cas académique (à 532 nm et 1064 nm) sont présentés sur la Figure 5.5 et montrent un comportement similaire à l'AOD. La dépendance de  $\beta'$  à la taille et par conséquent à l'efficacité de diffusion et d'extinction (et donc au nombre de particules) est mise en évidence, dans le cas de *BCAR*, par le maximum ( $3.35 \cdot 10^{-6} Wm^2sr^{-1}$ ) à la 3ème section de taille ( $0.156 - 0.312 \mu m$ ). De même, à 1064 nm son maximum ( $1.39 \cdot 10^{-6} Wm^2sr^{-1}$ ) se produit à la 4ème section de taille ( $0.312 - 0.625 \mu m$ ).

Sous la couche d'aérosols ( $z < 700m$ ), la valeur de  $\beta'$  à 532 nm diminue à cause de l'extinction par la couche d'aérosols (l'intégration est faite à partir du sommet de l'atmosphère). A 1064 nm où l'extinction est beaucoup plus faible, le coefficient de rétrodiffusion contrôle sa valeur et par conséquent  $\beta'$  revient à son niveau d'avant la couche de particules. Ceci est moins prononcé dans le cas de particules de *DUST* où l'extinction est de plus petite amplitude.

### 5.2.4 Rapport de diffusion ( $R'$ ) et de couleur ( $\chi'$ )

Les profils de rapports  $R'(z)$  et  $\chi'(z)$  (cf Section 3) correspondants aux profils de  $\beta'$  ci-dessus sont présentés sur la Figure 5.6. Pour les deux espèces, leur évolution est

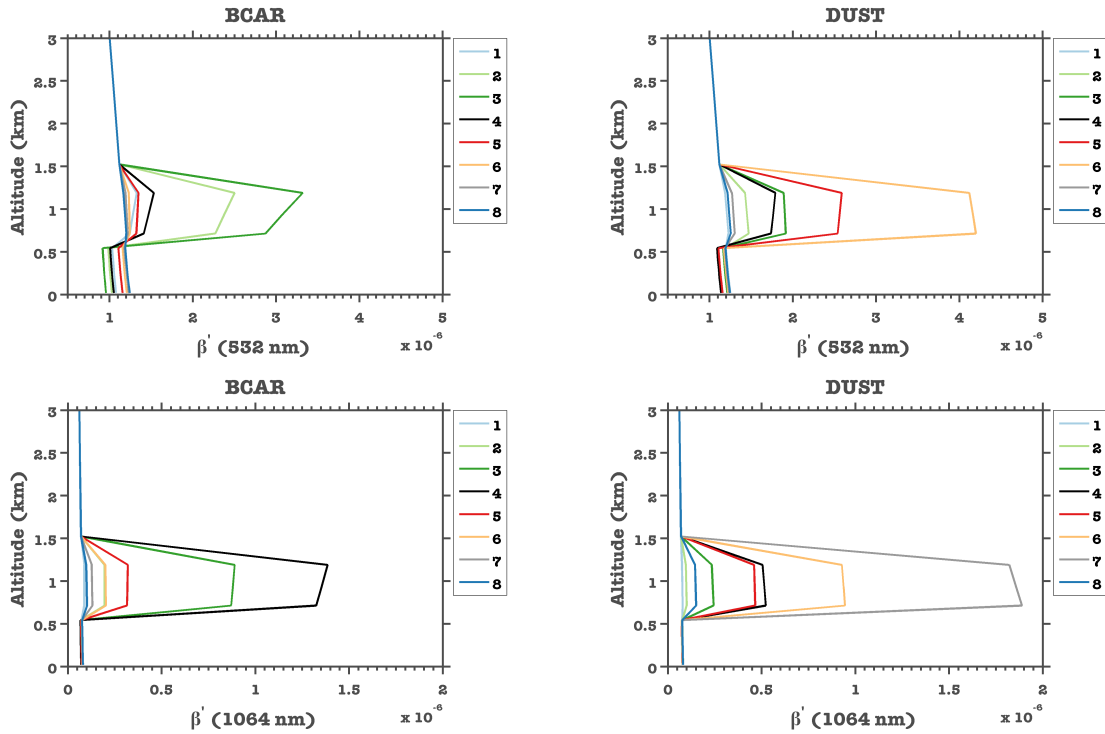


Figure 5.5 – Profils de  $\beta'$  pour BCAR (à gauche) et DUST (à droite), par section de taille en fonction de l'altitude et pour  $\lambda = 532, 1064 \text{ nm}$ .

étroitement liée avec le coefficient  $\beta'$ . Plus précisément le rapport de diffusion atteint sa valeur maximale à la même section de taille et altitude que le coefficient  $\beta'$ .

Quand la taille de particules reste suffisamment petite ( $R/\lambda < 0.1$ ) le rapport  $\beta'_{1064}/\beta'_{532}$  est quasiment constant. Dans ce cas, l'évolution de  $\chi'$  en fonction de l'altitude est pilotée par l'extinction. La rétrodiffusion des aérosols étant plus petite à  $1064 \text{ nm}$  qu'à  $532 \text{ nm}$ , nous avons en général  $\chi' \leq 1$ . A la 4ème section de taille ( $0.312 - 0.625 \mu\text{m}$ ) où l'extinction à  $1064 \text{ nm}$  obtient son maximum,  $\beta'_{1064}$  est plus fort que  $\beta'_{532}$  (Figure 5.3). Par conséquent,  $\chi'$  atteint sa valeur maximale (0.92 pour BCAR, 1.41 pour DUST). Quand les deux coefficients ( $\beta'_{1064}, \beta'_{532}$ ) commencent à se rapprocher,  $\chi'$  diminue.

### 5.3 Incertitudes dans le calcul des propriétés optiques - Conséquences pour les paramètres lidar

Comme indiqué plus haut, deux hypothèses principales, et donc sources possibles d'incertitudes, sont à considérer : la sphéricité des particules et la diffusion simple. J'ai évalué, dans le cadre de l'étude académique, l'importance potentielle de chacune de ces incertitudes.

La diffusion multiple n'est pas prise en compte ( $\eta'$  égal à 1 dans l'eq. 3.23) dans cette version du simulateur. L'approximation de diffusion simple est adéquate pour des faibles valeurs d'AOD et des particules non-absorbantes (Gordon, 1997) en télédétection passive. Cependant, comme discuté dans l'article de Liu et al. (2011), la diffusion multiple devient critique dans le cas de panaches denses ( $\text{AOD} \geq 1$ ). Ils montrent notamment que son impact peut être considérable lorsque l'extinction par des poussières minérales est plus importante

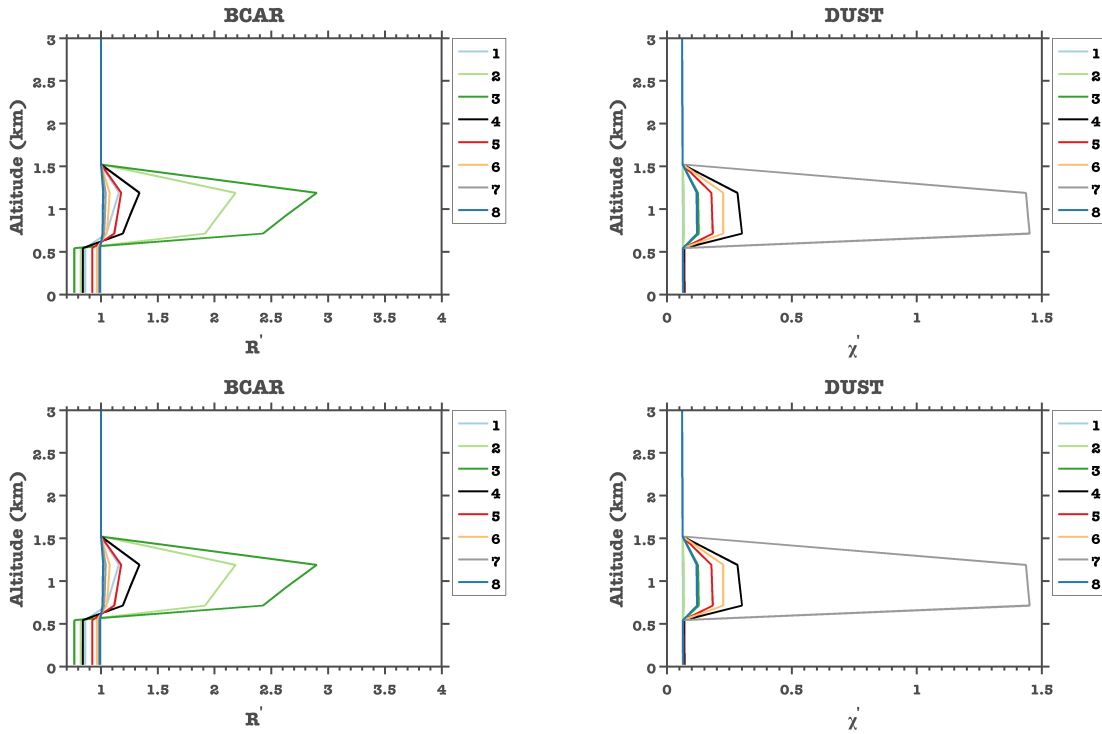


Figure 5.6 – Profils des rapports de diffusion ( $R'$ ) et de couleur ( $\chi'$ ) pour BCAR (à gauche) et DUST (à droite), par section de taille en fonction de l'altitude et pour  $\lambda = 532, 1064$  nm.

que  $2 \text{ km}^{-1}$ . Wandinger et al. (2010) montrent, en comparant les observations CALIOP et de surface, que négliger cet effet peut conduire à une sous-estimation du coefficient d'extinction de 20 à 30 % (pour des rayons effectifs de 3 et  $6 \mu\text{m}$  et la géométrie d'observation CALIOP). D'après la documentation CALIPSO (Quality Assessment Report), l'incertitude liée à la diffusion multiple est de l'ordre de 10-20%. Ici, nous avons analysé cet impact en utilisant différentes valeurs de  $\eta'$  dans l'équation 3.23 (Figure 5.7). Pour les poussières minérales,  $\eta'$  peut varier de 0.6 à 0.9 en fonction de l'épaisseur des couches considérées. Pour des couches dont l'épaisseur est supérieure à  $500 \text{ m}$ ,  $\eta'$  est plus grand que 0.85 et la diffusion multiple a peu d'effet (Winker, 2003). Le plus grand écart par rapport à la valeur de référence ( $\eta' = 1$ ) est de 2.08% et est obtenu pour  $\eta' = 0.6$ , une valeur considérée comme extrême. En général, les différences sont plus importantes dans la 4ème section de taille où l'extinction est la plus forte (puisque la diffusion affecte l'extinction).

Le comportement de  $\chi'$  est plus compliqué. Nous constatons une légère diminution (maximum  $-1.7\%$  pour  $\eta' = 0.6$ ) qui est toujours plus prononcée dans la 4ème section de taille. Il y a cependant également une augmentation marginale dans la 6ème section de taille. Ceci peut s'expliquer par la différence d'extinction entre 532 et 1064 nm (cf Section 5.2.3). Plus précisément, dans cette section  $\beta'_{1064}$  augmente légèrement plus (0.86%) que  $\beta'_{532}$  (0.48%), ce qui conduit à une valeur de  $\chi'$  plus élevée.

L'approximation de sphéricité est plus critique, en particulier pour les poussières minérales. Plus précisément, ces plus grosses particules peuvent conduire à une diffusion multiple non-négligeable (e.g. Wandinger et al., 2010). Leur non-sphéricité est connue pour diminuer l'efficacité de rétrodiffusion et augmenter le rapport lidar (extinction sur rétrodiffusion) par rapport à des sphères de même surface (e.g. Mishchenko et al., 1997; Mattis et al., 2002,

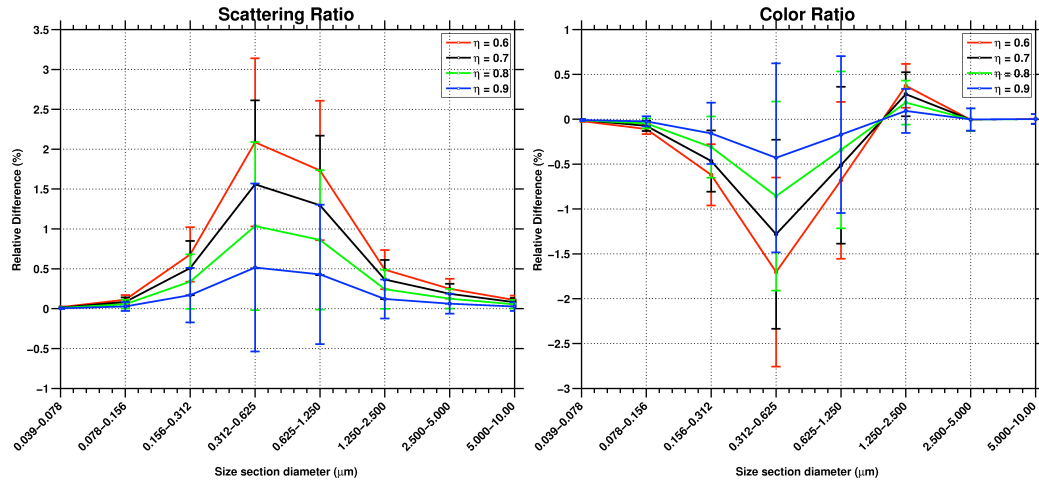


Figure 5.7 – Variation des paramètres  $R'$  (à gauche) et  $\chi'$  (à droite) par section de taille, en fonction du facteur de diffusion multiple  $\eta'$ .

et références incluses), mais a une influence plus faible sur le coefficient d'extinction (e.g. Müller et al., 2003). En effet, la forme des aérosols a un impact sur la fonction de phase, en particulier dans la direction arrière (angle  $\pi$ ) pour laquelle elle est plus faible pour les particules non-sphériques. Müller et al. (2003) ont montré que les erreurs sur la fonction de phase peuvent atteindre 50% si la mauvaise forme de particule est considérée. Gasteiger et al. (2011) estiment que des poussières minérales sphériques impliquent un rapport lidar 55 à 70 % plus faible que pour d'autres sphéroïdes. Ici, nous avons estimé la sensibilité des paramètres lidar ( $R'$  et  $\chi'$ ) à la sphéricité des particules en faisant varier la fonction de phase  $P_\pi$ . La Figure 5.8 montre que  $R'$  et  $\chi'$  diminuent tous les deux avec  $P_\pi$ . Par exemple, une diminution de 50% de  $P_\pi$  implique une diminution de 36.2% de  $R'$  (6ème section de taille) et de 45.3% de  $\chi'$  (7ème section de taille). C'est donc un effet considérable. Cependant, l'incertitude exacte introduite par l'approximation de non sphéricité est difficile à quantifier car des incertitudes additionnelles sont à considérer : les variations de la composition chimique, de la distribution en taille et de la forme (rapport d'aspect).

L'utilisation de sphéroïdes orientés de manière aléatoire permet d'atteindre une meilleure performance (Dubovik et al., 2002b). Pour mieux quantifier les différences entre des particules sphériques et non-sphériques, un calcul T-matrix doit être utilisé. Ceci sera pris en compte dans des versions ultérieures de l'outil OPTSIM.

### 5.3.1 Limites de détection CALIOP pour différents types d'aérosols

Nous réalisons dans cette partie une analyse théorique des limites de détection pour CALIOP et pour différentes espèces d'aérosols (espèces CHIMERE). C'est-à-dire qu'en utilisant des distributions en taille typiques de zones urbaines, suburbaines et rurales pour chaque espèce nous allons rechercher les valeurs de concentrations de ces aérosols dans l'atmosphère à partir desquelles une observations claire par CALIOP pourra être réalisée.

Nous considérons pour cela un seuil de détection CALIOP de  $R' = 1.2$  à 532 nm. En dessous de cette valeur, le signal peut être difficile à distinguer du bruit (Chepfer et al., 2012). Comme nous moyennons plusieurs profils, nous considérerons que cette valeur représente une limite haute (donc plus contraignante). Les valeurs de concentrations limites (médiane) pour chaque espèce et chaque section de taille sont présentées sur la Figure 5.9

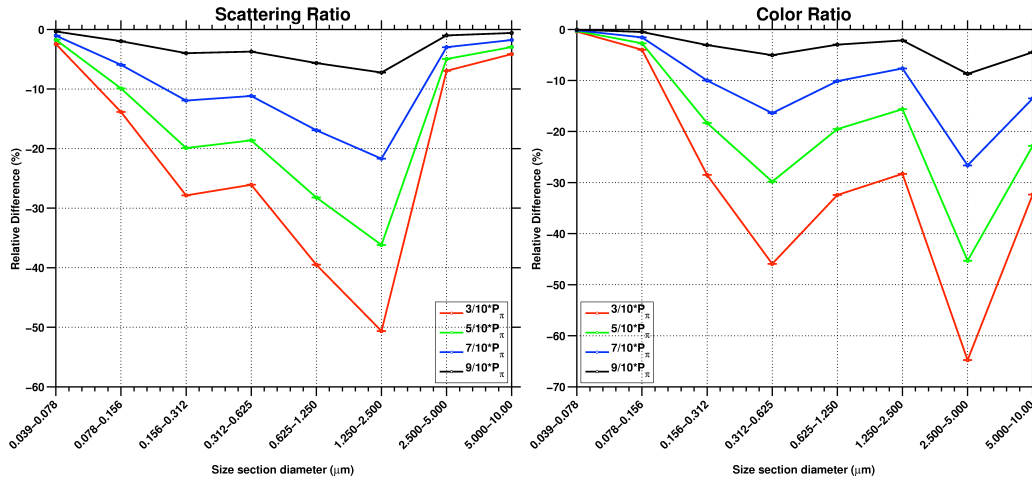


Figure 5.8 – Variation des paramètres  $R'$  (à gauche) et  $\chi'$  (à droite) par section de taille, en fonction de la fonction de phase de rétrodiffusion  $P_\pi$ .

et indiquées dans le [Tableau 5.4](#). Nous remarquons qu'elles dépendent fortement du nombre de particules et de leur taille (comme expliqué dans la section 5.2.3).

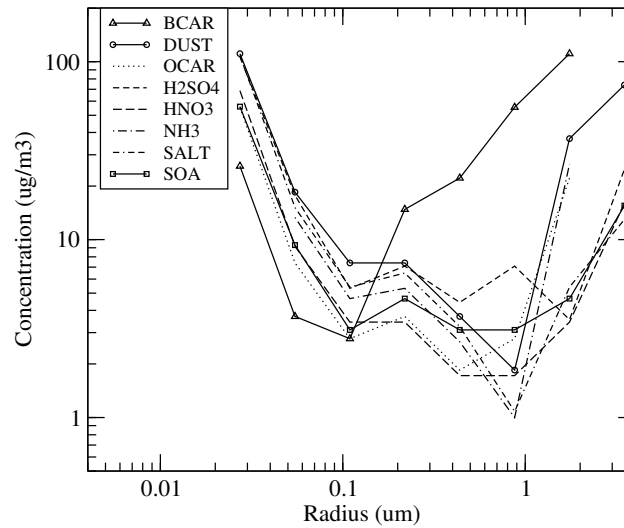


Figure 5.9 – Seuil théorique de concentration (en  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) par espèce chimique et par section de taille pour  $R' = 1.2$  (seuil de détection nuit CALIOP à 532 nm). La concentration pour chaque espèce est localisée dans la basse troposphère  $\sim 700$  et  $\sim 1200$  m d'altitude.

En général, pour les concentrations dans la basse troposphère, la médiane est comprise entre  $\sim 2.4$  et  $5.5 \mu\text{g m}^{-3}$  pour toutes les espèces. La valeur la plus forte est obtenue pour les poussières minérales (médiane à  $11.3 \mu\text{g m}^{-3}$ ). Si l'on compare aux ordres de grandeur en Europe ([Putaud et al., 2010](#)), ces limites sont généralement dépassées dans des conditions polluées (urbaines), mais sont en-dessous ou proches des valeurs observées en milieu peu pollué.

espèce	Concentration ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )	Section de taille ( $\mu\text{m}$ )
<i>OCAR</i>	3.8	0.625 - 1.250
<i>BCAR</i>	4.7	0.156 - 0.312
<i>DUST</i>	11.3	1.250 - 2.500
<i>SOA</i>	3.2	0.156 - 0.312 & 0.625 - 2.500
<i>H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub></i>	5.5	2.500 - 5.000
<i>HNO<sub>3</sub></i>	2.4	0.625 - 2.500
<i>NH<sub>3</sub></i>	3.4	1.250 - 2.500
<i>SALT</i>	3.3	1.250 - 2.500

Tableau 5.4 – Valeurs de concentrations limites pour chaque espèce et chaque section de taille pour  $R' = 1.2$  (seuil de détection nuit CALIOP à 532 nm).

## 5.4 Application à un cas d'étude réel : transport de poussières désertiques

Afin de mettre en évidence l'apport du simulateur, nous analysons un épisode de transport de poussières désertiques (*DUST*) à l'aide du simulateur OPTSIM. La poussière minérale est connue pour contribuer de manière important au budget de polluants particulaires dans la région méditerranéenne (e.g. Bessagnet et al., 2008; Querol et al., 2009). Transportée principalement depuis le désert du Sahara en Afrique (Laurent et al., 2008), il en résulte souvent un dépassement des seuils de qualité de l'air dans les pays les plus concernés comme l'Espagne (e.g. Escudero et al., 2007), l'Italie (e.g. Gobbi et al., 2007) ou la Grèce (e.g. Kaskaoutis et al., 2008).

Nous comparons ici des simulations CHIMERE aux observations par télédétection passive AERONET et MODIS pour une première évaluation. Une comparaison détaillée aux observations actives CALIOP est ensuite présentée. Les caractéristiques des différentes observations utilisées sont décrites dans la Section 3.

### 5.4.1 Comparaison entre AERONET, MODIS et CHIMERE

Nous commençons notre analyse par une évaluation générale de notre simulation pour l'été 2007 (du 29 juin au 6 septembre) à l'aide des observations du réseau AERONET.

Les séries temporelles de l'AOD AERONET (à 500 nm) et CHIMERE (à 532 nm) pour trois stations autour du bassin sont présentées sur la Figure 5.10. Nos résultats mettent en évidence la capacité du modèle à reproduire de manière satisfaisante la pollution de fond et la plupart des événements pendant cette période. La corrélation pour les sites de Carpentras (Espagne), Lecce (Italie) et Blida (Algérie) sont respectivement 63%, 56% et 58%. Néanmoins, les valeurs absolues d'AOD sont généralement sous-estimées. Ces scores sont en accord avec les performances des modèles de qualité de l'air actuels (e.g. Stern et al., 2008).

Les valeurs d'AOD les plus élevées sont observées sur le site de Blida (2.88°E, 36.5°N). Il s'agit d'une station particulièrement bien adaptée pour l'étude de l'impact du transport de poussière désertique car il est situé au nord du désert du Sahara. La série temporelle du coefficient d'Angström à 440 – 870 nm par AERONET et CHIMERE et la contribution de *DUST* au budget de *PM*<sub>10</sub> simulé sont présentés sur la Figure 5.11. Plusieurs événements majeurs ont été détectés à partir des observations AERONET, avec des valeurs fortes pour l'AOD et faibles pour le coefficient d'Angström ( $\alpha$ ). Les valeurs faibles (autour de 0.3) d' $\alpha$  correspondantes indiquent qu'il s'agit d'un événement de transport de poussières minérales.

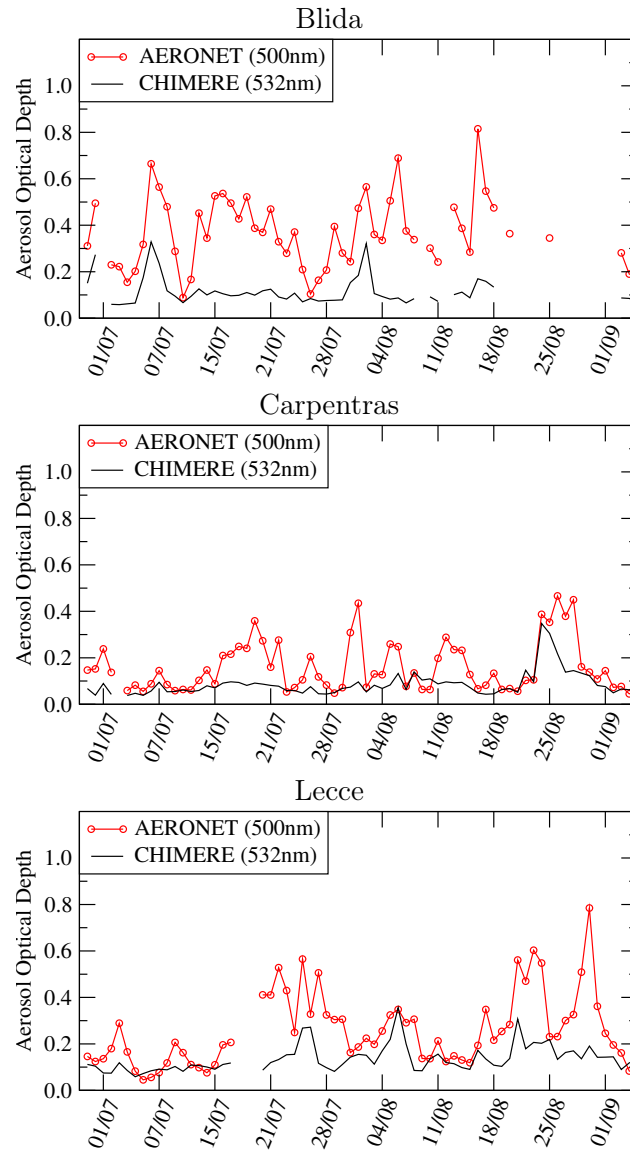


Figure 5.10 – Evolution temporelle de l'AOD moyenne journalière par site AERONET (à 500 nm, courbe rouge) et l'AOD CHIMERE correspondante (à 532 nm, courbe noire) pour l'intervalle 29 juin - 6 septembre 2007.

Les aérosols de poussière désertique présentent en effet des valeurs d' $\alpha$ , inférieures à environ 1.2 (e.g. Dubovik et al., 2002a). Le très bon accord pour les faibles valeurs du coefficient  $\alpha$  met en évidence la capacité du modèle à bien reproduire la taille moyenne de particules de *DUST*. Cependant, les pics d'AOD observés sont généralement sous-estimés par le modèle. Pour cette station nous constatons une corrélation de 58%, un biais (modèle-observations) négatif de l'ordre de 0.25, un RSME de 0.28 pour l'AOD totale (à 500 nm).

Deux événements observés à la station de Blida (choisi pour la disponibilité des données satellites et au sol) seront détaillés dans la suite : 7-9 juillet et le 13-15 juillet. Le modèle montre une augmentation importante de la charge en aérosols ( $PM_{10}$ ) due aux particules de *DUST* transportées de la partie algérienne du désert du Sahara.

Afin d'évaluer la structure horizontale du panache, nous comparons l'AOD simulée

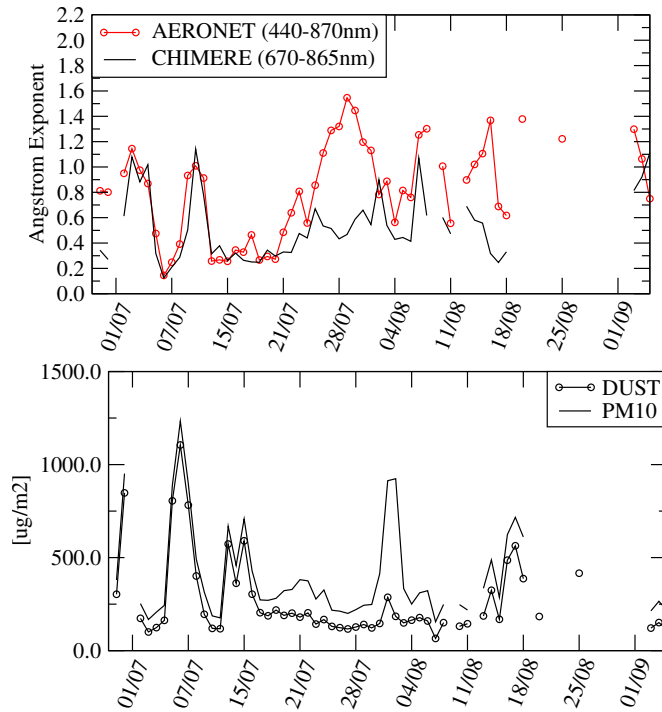


Figure 5.11 – Evolution temporelle du coefficient d'Angström (440–870 nm) AERONET et CHIMERE pour la station Blida et la concentration de DUST et des PM<sub>10</sub> correspondante pour l'intervalle 29 juin - 6 septembre 2007.

avec celle du capteur MODIS (Figure 5.12). Selon les observations, cet événement a été caractérisé par des émissions intenses de DUST, couvrant la partie nord-ouest de l'Afrique et résultant en des valeurs d'AOD allant jusqu'à 0,93 (à 550 nm) tandis qu'une grande partie du panache a été transporté vers le nord du bassin. La comparaison entre l'AOD moyenne CHIMERE et MODIS pour l'intervalle 7-9 juillet 2007 montre que la localisation du panache simulé est cohérente avec les observations, mais aussi que son intensité et son étendue horizontale sont sous-estimées. Etant donné que la taille des particules est bien simulée selon la comparaison avec AERONET (Figure 5.10), cette divergence peut être attribuée en grande partie aux émissions utilisées et/ou à des erreurs de transport. Le deuxième événement, plus petit et plus local, est simulé mais son intensité et son étendue sont sous-estimées.

#### 5.4.2 Comparaison entre CHIMERE et CALIOP

Pour chacun des événements sélectionnés, la trace du satellite qui croise le panache ainsi que l'AOD CHIMERE correspondante sont présentés sur la figure Figure 5.13.

Les comparaisons entre observations CALIOP de niveau 2 et simulations correspondantes sont dans un premier temps présentées, avant de décrire les comparaisons aux L1. Ces deux étapes nous permettent de vérifier la validité et l'intérêt de la comparaison aux L1 par rapport à l'approche classique.



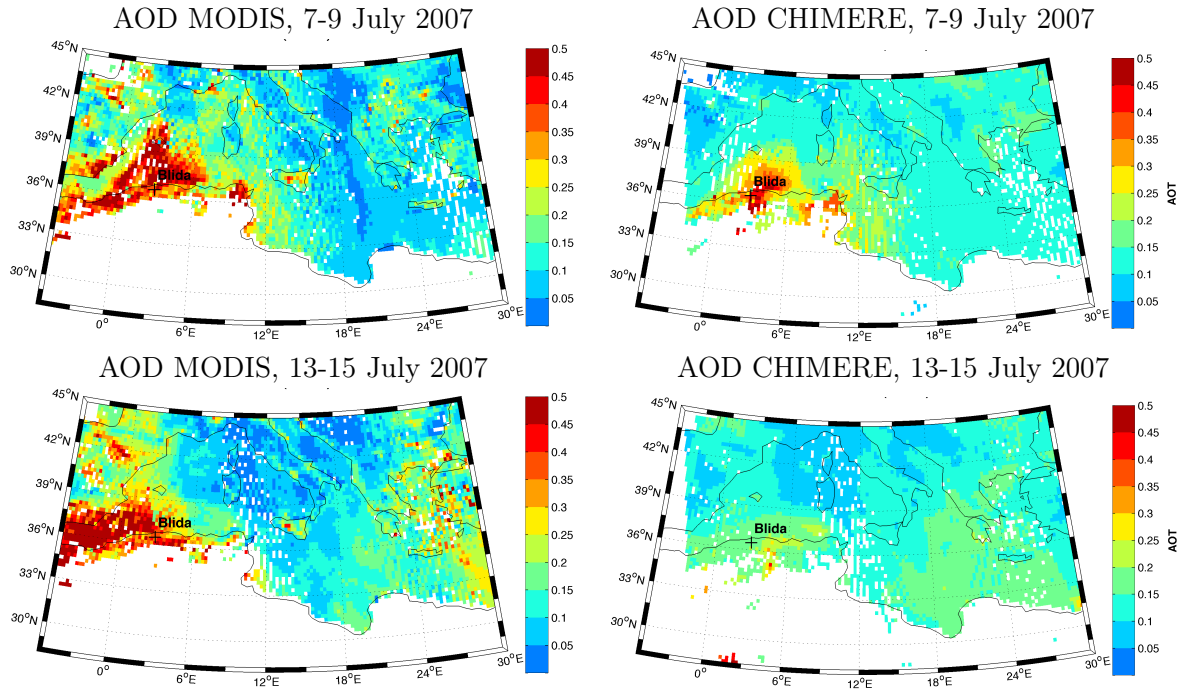


Figure 5.12 – Carte d'AOD moyenne par MODIS (à 550 nm) et CHIMERE (à 532 nm) pour les intervalles 7-9 et 13-15 juillet 2007. Les données MODIS sont projetées à la résolution du modèle.

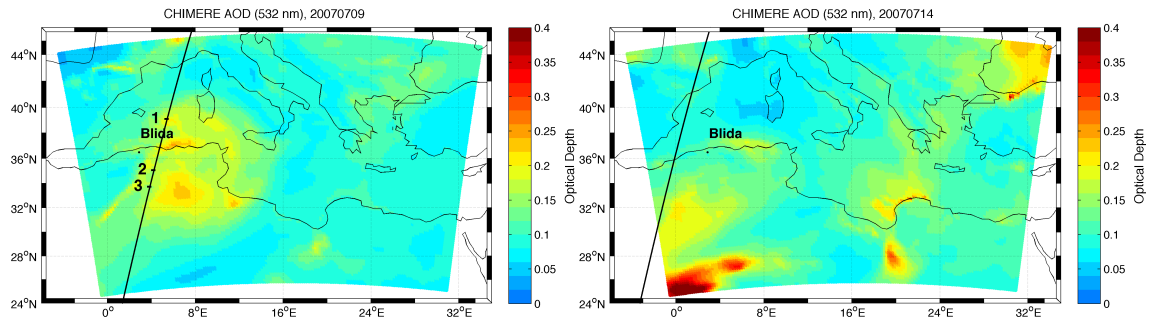


Figure 5.13 – AOD simulée à 532 nm pour la nuit du 9 et 14 juillet 2007 à l'heure de passage de CALIPSO.

### Comparaison entre CHIMERE et les observations CALIOP de coefficients d'extinction et de rétrodiffusion (L2)

Les observations de coefficient d'extinction CALIOP et les simulations CHIMERE correspondantes sont présentées sur la Figure 5.14 pour l'événement du 7-9 juillet 2007.

Une couche d'aérosol est clairement visible le long de la portion d'orbite sur les deux figures. Pour les deux coefficients, le maximum est localisé au-dessus du continent autour de 35°N, près de la station de Blida, alors que le panache s'étend au-dessus de la mer. Le panache est localisé entre 1.5 et 4.5 km d'altitude. Dans les simulations CHIMERE, la couche d'aérosols est simulée dans la même zone, mais les deux coefficients sont fortement sous-estimés. Le coefficient d'extinction est notamment beaucoup plus élevé dans

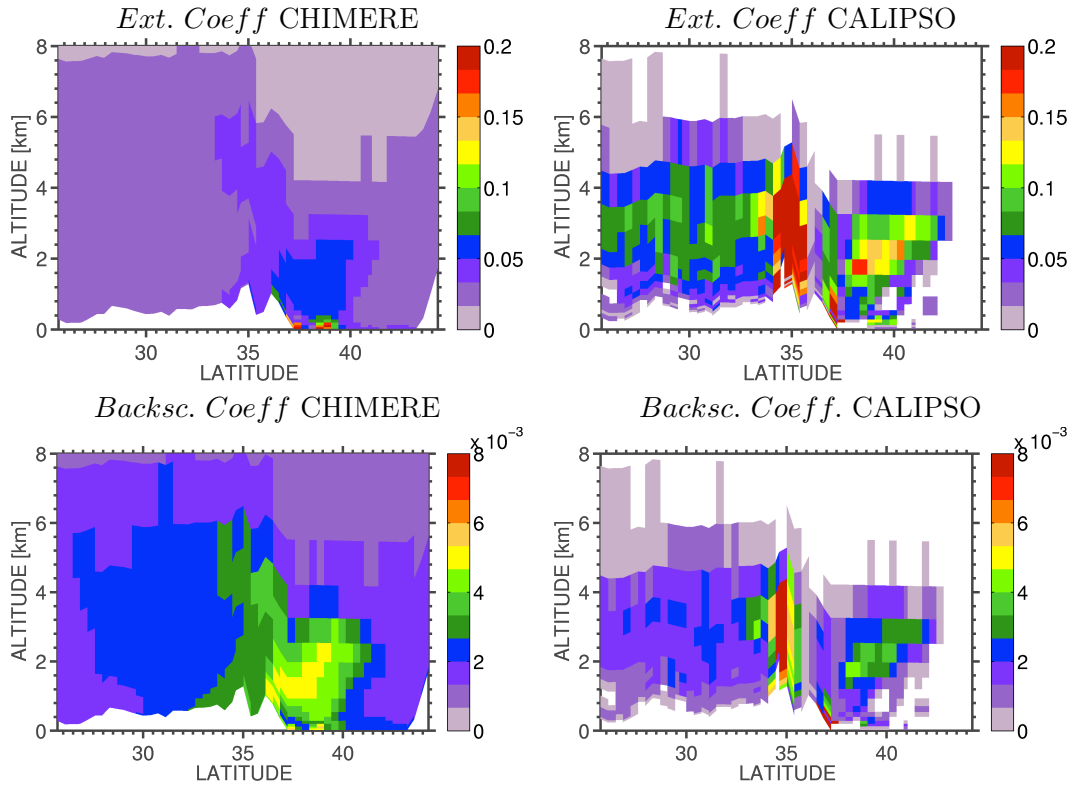


Figure 5.14 – Coefficients d'extinction (en  $\text{km}^{-1}$ ) et de rétrodiffusion (en  $\text{km}^{-1} \text{sr}^{-1}$ ) CHIMERE (à gauche) et CALIOP (à droite) pour la trace du 9 juillet 2007 (nuit). Les données CALIPSO sont filtrées pour éliminer la contribution de nuages au signal et moyennées sur la résolution du modèle.

les observations. Ceci pourrait être expliqué par la classification du type d'aérosol dans l'algorithme de traitement des données CALIOP. En effet, une large fraction de la couche observée est classée comme "poussières polluées" alors que CHIMERE ne simule que des poussières dans cette zone. La contribution exacte des poussières dans la simulation est discutée dans la partie suivante.

### Comparaison entre CHIMERE et les observations CALIOP de rapport de rétrodiffusion atténué et de rapport de couleur (L1B)

Le rapport de diffusion  $R'$  observé et simulé pendant l'événement de transport de poussières minérales discuté ci-dessus est représenté sur la Figure 5.15. Comme pour les produits L2, les observations de  $R'$  CALIOP mettent en évidence une couche d'aérosols autour de  $35^\circ\text{N}$ , s'étendant verticalement de 3 à 4,5 km d'altitude, et au-dessus de la mer vers le nord-est autour de 1-3 km d'altitude. Pour cet événement, la structure verticale du panache est bien reproduite par CHIMERE. Cependant, son étendue verticale est surestimée.

Nous remarquons également que l'épaisseur de la couche est plus faible que d'après les observations L2. Ceci peut s'expliquer par l'impact de l'extinction sur  $\beta'$ , ce qui résulte en des valeurs plus faibles de rapport de rétrodiffusion atténué  $R'$ . En bon accord avec les observations, le même comportement est obtenu avec les simulations.

Trois profils de  $R'$  sont présentés sur la Figure 5.16 : l'un correspondant au maximum observé ( $35.19^\circ\text{N}$ ), le second localisé au-dessus de la mer ( $39.23^\circ\text{N}$ ) et le troisième plus proche de la zone d'émission ( $33.91^\circ\text{N}$ ). Ils correspondent aux points 1-3 de la Figure 5.13.

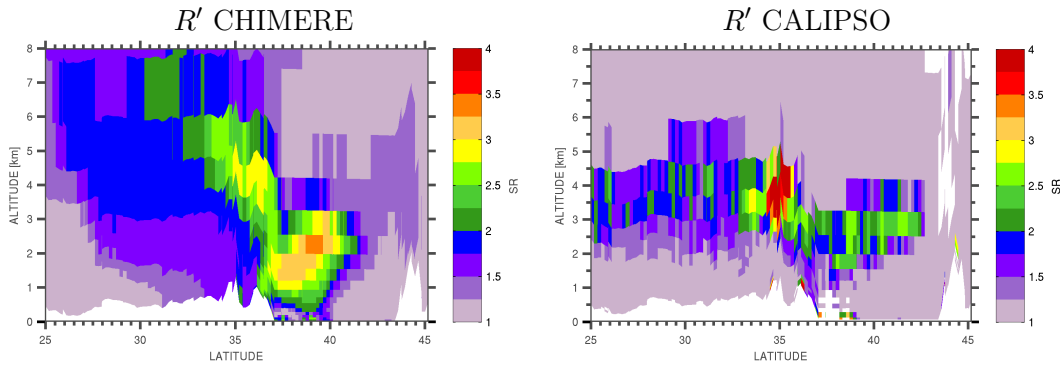


Figure 5.15 –  $R'$  CHIMERE et CALIPSO pour la trace du 9 juillet 2007 (nuit). Les données CALIPSO sont filtrées pour éliminer la contribution de nuages au signal et moyennées sur la résolution du modèle.

Selon nos résultats de simulation, l'espèce dominante dans tous les profils est la poussière (93.5% - 97.3%). Nous constatons aussi une augmentation de la contribution de sels marins (3.5%) pour le second profil ( $\lambda = 5.51^\circ$ ,  $\phi = 39.23^\circ$ ) en cohérence avec le pic observé près de la surface. Pour la portion d'orbite complète, l'altitude moyenne de la valeur maximale de  $R'$  simulée est 4.51 km contre 2.93 km pour CALIOP, avec une erreur quadratique de 2.53 km et une corrélation de 0,45.

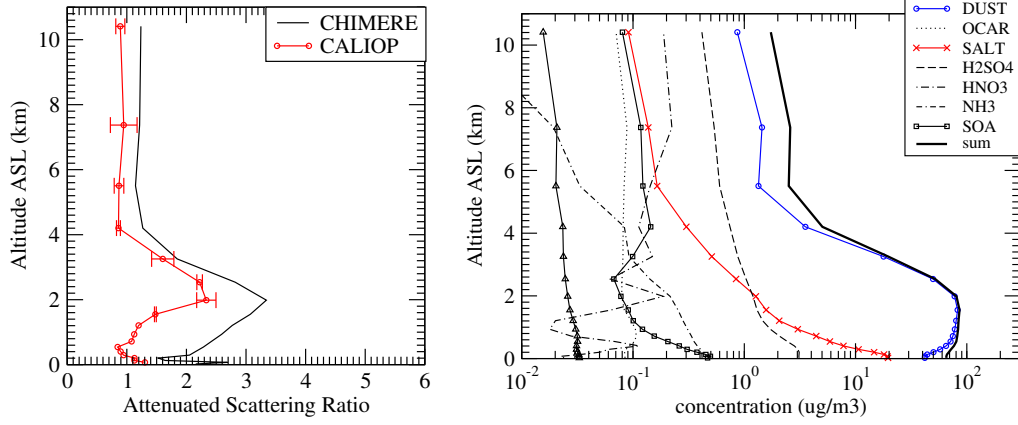
La valeur de  $R'$  simulée près du pic observé est sous-estimée ( $\sim 35^\circ N$ ) et surestimée au-dessus de la mer ( $\sim 40^\circ N$ ). Cette différence peut être liée à l'ampleur mais aussi à un décalage temporel des émissions. En moyenne, la corrélation entre la valeur maximale de  $R'$  simulée et observée est de l'ordre de 0.6 avec un biais de 1.12 et un RSME égal à 0.68.

Pour le 14 juillet 2007, les valeurs de  $R'$  simulées montrent des augmentations autour de 3-4 km d'altitude au-dessus de la portion sud de l'orbite qui est en bon accord avec le panache observé à 4 km. Ici encore, le modèle sous-estime fortement les valeurs de  $R'$  et surestime l'étendue verticale du panache.

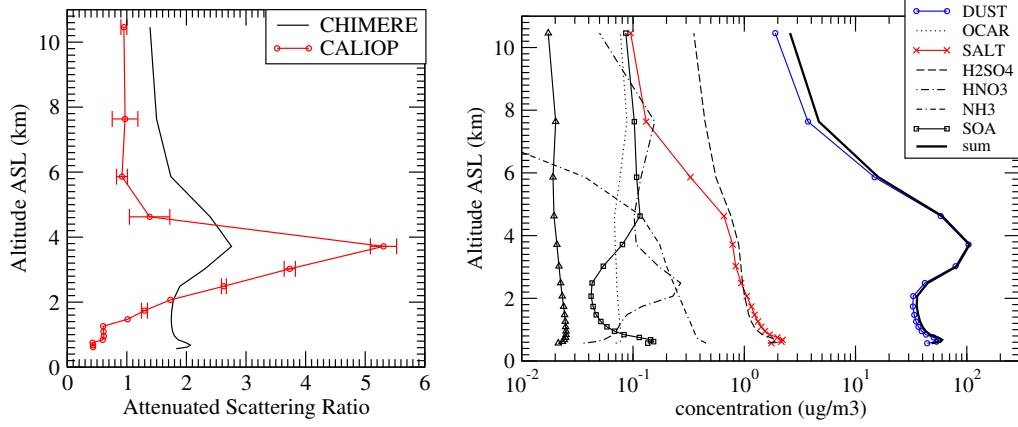
Le rapport de couleur simulé est sous-estimé pour les deux événements Figure 5.17. Pour le premier événement, la localisation du maximum ( $\sim 1.2 - 1.3 \mu m$ ) de rayon effectif  $R_{eff}$  simulé est cohérent avec le pic de  $\chi'$  observé. Comme le montre la Figure 5.11, cela correspond à des poussières désertiques en majorité. Cependant la valeur de  $R_{eff}$  fournit une information sur la taille moyenne des particules alors que la valeur de  $\chi'$  dépend de la distribution en taille (cf Figure 5.6). Par exemple, des valeurs plus élevées de  $R_{eff}$  peuvent être associées à des valeurs plus faibles de  $\chi'$  (par exemple profil autour de  $35^\circ N$  par rapport au profil autour de  $39^\circ N$ ) lorsque les concentrations dans des plus petites sections de taille sont plus élevées. Plus spécifiquement, autour de  $35^\circ N$  à l'altitude du pic de  $R_{eff}$  calculé, la distribution en taille est dominée par la 8ème section de taille. En inversant la concentration entre la 8ème et la 7ème section de taille (la concentration totale reste constante) nous remarquons une augmentation de 63.6% pour  $\chi'$  avec une diminution de 8.4% pour  $R_{eff}$ . Ceci suggère que, bien que la taille moyenne des particules et leur localisation soit bien représentée dans le modèle (en accord avec les comparaisons d'exposant d'Angström), une révision de la distribution de la taille de la poussière serait bénéfique pour les comparaisons du  $\chi$ .

Des sources d'aérosols manquantes dans le modèles pourraient aussi expliquer les différences de  $\chi'$ . La principale différence entre observations et simulation du transport du panache est cependant son étendue verticale. La sur-estimation de celle-ci par CHIMERE

(1)  $\lambda=5.511$ ,  $\phi=39.232$



(2)  $\lambda=4.234$ ,  $\phi=35.195$



(3)  $\lambda=3.967$ ,  $\phi=33.907$

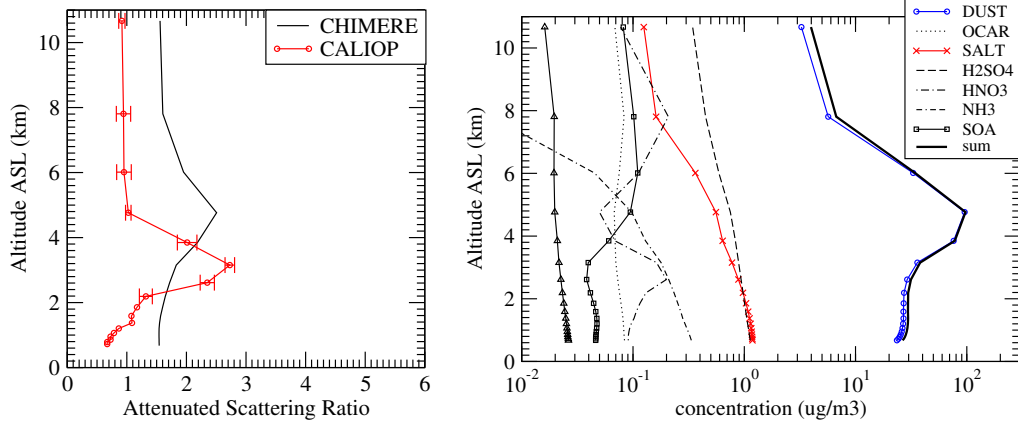


Figure 5.16 – Profils de rapport de diffusion par CALIOP and CHIMERE pour la trace du 9 juillet 2007 (nuit).

peut être liée à la résolution verticale choisie, qui décroît jusqu'à environ 1 km dans la troposphère libre. La comparaison suggère un besoin pour une meilleure résolution verticale afin de mieux représenter le transport à longue distance, limiter la dilution du panache, et

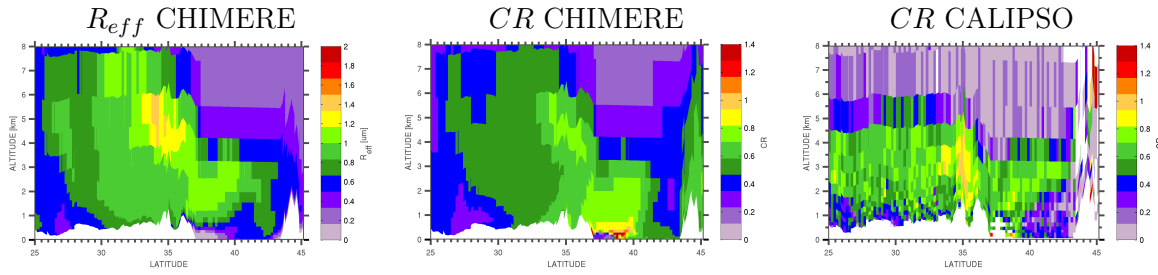


Figure 5.17 – Rayon effective et rapport de couleur CHIMERE et CALIPSO pour la trace du 9 juillet 2007 (nuit). Les données CALIPSO sont filtrées pour éliminer la contribution de nuages au signal et moyennées sur la résolution du modèle.

mieux simuler le mélange des composants atmosphériques.

Mais la paramétrisation de la diffusion dans le modèle peut aussi expliquer le transport trop important vers la haute troposphère. La sous-estimation de  $R'$  proche de la source peut être liée à une sous-estimation des émissions, qui est également constatée lors des comparaisons à l'AOD.

Les grandes caractéristiques mises en évidence par la comparaison aux observations L1B sont cohérentes avec la comparaison aux observations L2. Cependant, dans ce cas, nous nous basons uniquement sur les quantités observées et il n'est pas nécessaire de vérifier des hypothèses ou classifications éventuellement incohérentes entre traitement des observations et simulations.

## 5.5 Conclusions

Dans ce chapitre nous avons présenté l'outil de comparaison OPTSIM, développé pour une comparaison directe des simulations d'un modèle de chimie-transport avec les observations des capteurs de télédétection passifs et actifs.

La simulation des propriétés optiques des aérosols et ainsi des paramètres optiques (AOD,  $\alpha$ ) intégrées sur toute la colonne atmosphérique, permet une évaluation de la distribution horizontale et temporelle des aérosols. Le point fort de ce travail est la simulation du signal lidar directement comparable aux observations de niveau 1B de CALIOP. Plus précisément, la simulation du rapport de diffusion permet une évaluation des paramétrisations de la diffusion verticale dans le modèle et nous donne accès à la distribution verticale des aérosols qui joue un rôle clé dans le transport à longue distance. De plus, la simulation du rapport de couleur nous aide à identifier des problèmes éventuels liés à la taille moyenne et la distribution en taille des aérosols modélisés.

Les performances de l'outil sont dans un premier temps évaluées sur un cas académique pour deux espèces différentes (carbone suie et poussière minérale). Chaque étape du calcul est détaillé et expliqué.

Une application de OPTSIM à l'évaluation de la simulation par CHIMERE de deux événements de transport de poussières minérales observées pendant l'été 2007 est ensuite présentée. Une première analyse est menée en se basant sur les comparaisons aux observations AERONET et MODIS (passives). Une comparaison aux profils lidar CALIOP de niveau 1B et de niveau 2 est ensuite discutée. Comme nous nous intéressons uniquement aux observations de panaches d'aérosols, les données ont été filtrées (cf Section 3). Nos résultats montrent que le modèle reproduit de manière satisfaisante la structure générale du

panache de poussière (horizontalement et verticalement) et la taille moyenne de particules. Néanmoins, l'intensité des événements examinés apparaît sous-estimée. Ceci peut être attribué en partie aux émissions et au transport. Au niveau vertical, nous avons identifié une tendance du modèle à surestimer l'étendu vertical des panaches ainsi que leur altitude, liée respectivement à la paramétrisation de la diffusion verticale et la résolution du modèle.

Ce travail illustre également l'information supplémentaire qui peut être attendue de l'utilisation des observations lidar pour l'analyse des événements de pollution particulière. Toutefois, en raison de leur couverture horizontale limitée, l'utilisation complémentaire des capteurs passifs reste nécessaire.

L'outil de comparaison OPTSIM a été développé de manière flexible pour être adaptable à d'autres modèles de chimie-transport. Il est mis à disposition via la page internet : [www.lmd.polytechnique.fr/optsim/](http://www.lmd.polytechnique.fr/optsim/).



## 6 Relative impact of sporadic aerosol emissions on surface particulate matter in the Euro-Mediterranean : The summer of 2007

*Ce chapitre faisant l'objet d'un article en préparation, j'ai choisi de le rédiger en anglais.*

### 6.1 Introduction

Surrounded by densely populated cities and industrial sites in the north and in close proximity to the Sahara desert in the south, the Mediterranean region is heavily influenced by numerous anthropogenic and natural aerosol sources. The presence of those sources combined with complex interactions between atmospheric dynamics, geographic features and land-sea temperature gradients (Lionello et al., 2006) lead to a European aerosol load maximum according to many studies based on both measurements and modeling (e.g. Textor et al. 2006; Rodriguez et al. 2007; Querol et al. 2009; Putaud et al. 2010). A mixture of different sources is usually observed due to the long-range transport of the associated particles (Pace et al., 2005; Gerasopoulos et al., 2011; Dall'Osto et al., 2010; Boselli et al., 2012). However, the specific impact of each aerosol source cannot be easily assessed due to the complex characteristics of this region (e.g. orography, atmospheric dynamics), but also due to uncertainties in emissions. Dust and wildfires in particular, hold an important role in the regional aerosol loading with a pronounced seasonal pattern that results in severe aerosol-related pollution episodes especially during the summer. Although the main features of the spatial and temporal variability of both sources are already known, their sporadic spatial and temporal occurrence complicates the assessment of their impact on regional air-quality.

This study aims at quantifying the relative impact of these intense and sporadic sources on the regional particulate matter budget ( $PM_{2.5}$ ,  $PM_{10}$ ) in the Euro-Mediterranean area. For this purpose, we use a combined analysis of atmospheric observations of aerosol concentrations and optical properties with simulations from a regional chemistry-transport model (CTM) which allows an assessment of the transport pathways from each individual source. Since the surface concentration levels are tightly linked to the vertical distribution of PM (due to dilution but also because of long range transport events) we equally examine the horizontal and vertical structure of the emitted plumes (e.g. location, spread).

Meteorological conditions hold a key role in the development of aerosol-related pollution events in the Mediterranean and their transport over the region. Being in a transitional zone between the subtropical high-pressure belt and the mid-latitude westerlies and low pressure systems (Millán et al., 2002), the Mediterranean region is characterized by hot, dry summers and mild, wet winters. These atmospheric conditions lead to a maximum aerosol loading during the summer.

The dominant aerosol source in the Euro-Mediterranean is mineral dust from Africa (e.g. Laurent et al. 2008) which is known to contribute significantly to overpasses of the pollution thresholds in addition to local anthropogenic pollutants (e.g. Querol et al. 2009; Gobbi et al. 2007; Kaskaoutis et al. 2008). In the western part of the region most of the dust events take place during the summer (e.g. Rodriguez et al. 2007), while in the



Eastern Basin, maximum aerosol concentrations appear earlier as dust episodes occur more frequently in spring and early summer (e.g. [Koçak et al. 2007](#)).

Vegetation fires are another sizable sporadic source that needs to be accounted for, especially during the summer when the hydrological and meteorological conditions favor their occurrence and spread. The long-range transport of those emissions leads to elevated aerosol loadings far from the sources (e.g. [Hodzic et al. 2007](#); [Miranda et al. 2007](#); [Sciare et al. 2008](#)). While their contribution to the atmospheric aerosol loading and thus to the impairment of the local and regional air quality can be significant (e.g. [Barnaba et al. 2011](#); [Amiridis et al. 2009](#); [Pace et al. 2005](#)) they remain underrepresented in chemistry-transport models. This is due to the numerous uncertainties regarding the area burned (e.g. [Giglio et al. 2006](#); [Lioussé et al. 2008](#); [Hyer and Reid 2009](#)), the characteristics of the fires (e.g. fuel type and load), emission factors or injection height (e.g. [Kasischke and Penner 2004](#); [Lioussé et al. 2004](#); [Giglio et al. 2006](#); [Ito and Penner 2005](#); [van der Werf et al. 2006](#)) as well as a high spatial and temporal variability.

We focus our analysis on the summer of 2007 which was marked by extreme meteorological conditions (consecutive heat waves and drought) and severe fire episodes in the eastern Mediterranean and Europe. According to the European Forest Fire Information System, the year 2007 was well above the average of the previous last 3 decades in terms of burned area (574 361 against 495 471 *ha* burned respectively). The burning season was particularly severe for Greece where the burned area reaching extreme values ([JRC, 2008](#)). Several studies have highlighted the important enhancements in atmospheric gases (e.g. [Turquety et al. 2009](#); [Coheur et al. 2009](#); [Hodnebrog et al. 2012](#)) and aerosols (e.g. [Liu et al. 2009](#); [Kaskaoutis et al. 2011](#)) due to these fire episodes. This case study is particularly interesting since it was captured very well by satellite sensors as the resulting smoke plumes, fanned by north-easterly winds, were transported over the sea crossing the south Ionian Sea and reaching the northern part of the African continent.

This study relies on the synergistic use of modeling (CHIMERE chemistry-transport model) along with ground measurements of aerosol optical properties (AERONET) and surface concentrations (AIRBASE, EMEP) as well as optical properties observations from the A-TRAIN satellite constellation (e.g. MODIS, PARASOL, CALIPSO). Particulate matter (PM) surface concentration measurements are used to directly assess the PM levels at the surface. However, there is often a lack of information on the chemical composition of aerosols and these measurements do not provide information on the vertical distribution of the atmospheric particles. Since the impact of aerosols on air-quality and climate is tightly linked to their vertical distribution (e.g. lifetime, transport), this can be a serious shortcoming. Remote sensing observation of aerosol optical properties (full column) from ground-measurement networks (e.g. AERONET) provide good validating support for satellites and CTMs since there is less ambiguity in ground measurements (e.g. no surface contribution) and they use sophisticated and well-calibrated instruments to provide quality-assured measurements. However, they only provide local measurements and therefore cannot stand alone as an independent observing system. The complementary view from satellite observations, with good spatial and temporal coverage, is very useful for the detection of pollution episodes, estimation of spatial and temporal aerosol patterns, characterization of aerosol properties and their evolution during transport. However, there are several constraints on the ability of satellite instruments to accurately measure atmospheric composition. Apart from complications due to atmospheric conditions and/or type of surface, aerosol retrievals and the assessment of their role in the atmosphere can be challenging due to an increased complexity in both their macro-physical (e.g. sources, sinks, loading) and micro-physical properties (size, shape, chemical composition).

In this work, we first conduct an analysis of the ground and satellite observations in order to assess particulate matter levels, their spatial and temporal variability, and to identify the pollution hotspots around the Euro-Mediterranean domain for the summer of 2007. We then use CHIMERE to analyze three major dust and fire episodes, and quantify the relative impact of such pollution episodes on surface PM levels and exceedances of the PM pollution threshold. An evaluation of the emissions used as well as of the modeled transport and evolution of the plumes is presented. Finally, we highlight the information that can be derived from the synergy of different observations on a 4D scale for air-quality studies and we discuss the current limitations in both modeling and observations.

## 6.2 Methodology

### 6.2.1 Observations

Surface PM concentration measurements are taken from the European Environment Agency database, AIRBASE (<http://acm.eionet.europa.eu/databases/AIRBASE/>) for PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub>. We use daily-mean concentrations classified according to the location of the stations (rural, background, suburban, urban). Since these measurements do not provide information on the chemical composition of aerosols (for the period and region examined) we also examine data for  $H_2SO_4$ ,  $NO_3$  and  $NH_4$  from the European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP, <http://www.emep.int/>).

Regarding aerosol optical properties, the main products examined in this study are the aerosol optical depth (AOD) and the Angström Exponent ( $\alpha$ ) which provide information on the column-integrated aerosol load and size respectively. In particular, we use the aerosol optical depth (AOD) at 500 nm with a fine and coarse mode separation (SDA product), the total AOD at 870 nm and the corresponding  $\alpha$  from the level 2.0 cloud screened and quality-assured retrievals of the ground-based AERONET sun photometers measurements. The estimated precision of the direct aerosol optical depth measurements is  $\pm 0.01$  for  $\lambda > 440$  nm and for a recently calibrated instrument (Holben et al., 1998). The uncertainty in the inversions is more difficult to quantify, however it is estimated around 5% (Dubovik and King, 2000). We also use daily averages of the aerosol volume size distribution (dV/dlnr). Accurate information on the size distribution will benefit not only the analysis of aerosol pollution events but also model evaluation since aerosol optical properties such as the AOD are extremely sensitive to the particle-size. It is provided in 22 logarithmically equidistant bins in the range of  $0.05 \mu m \leq r \leq 15 \mu m$ . The errors in the retrieval of the volume size distribution are estimated to be lower than 10% at the peak of the aerosol size distribution while they can reach 35% for particles at the extremes of the size range (Dubovik and King, 2000).

Satellite observations from MODIS and POLDER-3 are also used to estimate the spatial and temporal extent of the observed aerosol plumes. Both instruments are known to be highly correlated with non-significant biases compared to AERONET retrievals (Bréon et al., 2011; Remer et al., 2008). We use the AOD and Angström Exponent products at 550 nm and 550-865 nm respectively of the MODIS/Aqua L2 5.1 collection data. These aerosol products are taken at an initial spatial resolution of 10 x 10 km. The accuracy of the MODIS AOD is estimated to be  $\pm 0.05 (\pm 0.15 \cdot AOD)$  over the land and  $\pm 0.03 (\pm 0.05 \cdot AOD)$  over the ocean (Levy et al., 2010). Errors in MODIS retrievals are mainly due to uncertainties in assumptions used for the determination of surface and aerosol properties (Remer et al., 2005).

The total (available only over seas) and fine mode AOD from POLDER-

3/PARASOL(LS2.v09.10) are used along with the Angström Exponent (at 865 *nm* and 670-865 *nm* respectively). Despite the lack of total AOD observations over land, the polarization-based retrievals of PARASOL are considered to be more accurate over land for smaller particles (e.g. wildfire particles) The typical accuracy of the PARASOL AOD is estimated to be  $\pm 0.05 \cdot \text{AOD}$  (Tanré et al., 2011) .

Complementary information on the vertical distribution of aerosols is obtained by the Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization (CALIOP) on board CALIPSO (Winker et al., 2009). We use the L1B vertical attenuated backscatter profiles, as described in Chapitre 5 of this thesis. Uncertainties in L1B data arise only from calibration biases, signal (shot) and background noise (e.g. Powell et al. 2009). Calibration uncertainty is particularly high at 1064 *nm* so we have chosen to base the analysis solely on observations at 532 *nm*. Since daytime CALIOP measurements are prone to higher noise levels from solar background illumination (e.g. Hunt et al. 2009), we examine in this study night-time observations only.

Finally, in order to identify the precise location of fires we use the MODIS Area Burned product (Giglio et al., 2009), that are also used to calculate fire emissions. The MCD64 area burned product provides dates of burning at 500 x 500m<sup>2</sup> resolution, and areas burnt are derived based on the fraction of the corresponding cells covered by vegetation. Only high confidence detections are considered.

## 6.2.2 Modeling

### Meteorology

Since CHIMERE is an off-line model, the Weather Research and Forecasting (WRF) model (Skamarock and Klemp, 2008) is used to provide the necessary input meteorological fields for the domains defined above. For this study, WRF is forced by the NCEP/GFS meteorological fields. The model is used in its non-hydrostatic configuration. The vertical grid covers 27 levels from the surface to 50 *hPa*. The model configuration (e.g. microphysics, radiation scheme, surface and planetary boundary layer physics) used here is the same as the one described in Menut et al. 2012. Next, the WRF outputs are interpolated on the vertical resolution of CHIMERE and are used to diagnose additional parameters (e.g. boundary layer height, friction velocity). Both meteorology and chemical concentration output fields are provided at 1 hour time intervals.

### Chemistry and transport

A detailed documentation of the emissions used in CHIMERE and of all physical and chemical processes accounted for by the model can be found in Menut et al. 2013a and in references therein. Regarding particulate matter, the aerosol species considered by the model are sulphates, nitrates, ammonium, dust, organic aerosols and sea-salt. An extensive evaluation of the model at a regional scale is presented in Vautard et al. 2007 and Bessagnet et al. 2008.

The anthropogenic emissions used in CHIMERE, for this study, are taken from the EMEP inventory (Tørseth et al., 2012). Biogenic emissions fluxes from species like isoprene,  $\alpha$ -pinene,  $\beta$ -pinene, limonene, ocimene and NO are calculated using the global MEGAN model (Guenther et al., 2006).

The dust emission fluxes are calculated using the parameterization of Marticorena and Bergametti 1995 for saltation and an optimized version of the dust production model of Alfaro and Gomes (2001) for sandblasting. The estimation of the threshold friction

velocity needed for the computation of the dust emission fluxes follows the [Shao and Lu 2000](#) scheme. In the case of a large domain (e.g. covering Africa for dust emissions and Europe for studying long-range transport) the resulting horizontal resolution may be low ( $1^\circ \times 1^\circ$ ). The sub-grid scale variability of winds is then estimated using a Weibull wind speed distribution. A complete description of the dust emissions calculation is presented in [Menut et al. 2007](#). Local European erosion is accounted for by the model according to the extension of the African scheme presented in [Bessagnet et al. 2008](#).

The fire emissions used in this study are calculated (for a specific fire and each model species  $i$ ) as follows :

$$E_i = \sum_{\nu=1}^{veg\ types} (A_\nu \cdot F_\nu \cdot \epsilon_{i,\nu}) \quad (6.1)$$

where  $A$  represents the burned area (in  $m^2$ ) for each vegetation type ( $\nu$ ),  $F$  is the fuel consumption factor ( $kg$  of dry matter per  $m^2$ ) and  $\epsilon$  is the emission factor. The area burned is derived from MODIS MCD64 product ([Giglio et al. 2009](#)) combined to the MODIS vegetation cover (Vcf) product (both at  $500 \times 500\ m$  resolution) in order to determine the fraction of vegetation in each grid cell. Only that fraction is assumed to have burnt. The fuel load is estimated by multiplying the biomass density, estimated from the ORCHIDEE global dynamic vegetation model ([Krinner et al., 2005; Maignan et al., 2011](#)), with the fraction that is assumed to be available for burning. In the current version of the inventory, the burning efficiency is estimated according to soil moisture (from ORCHIDEE). Finally, emission factors, which are specific to each species and vegetation type, are taken from the review of [Akagi et al. 2011](#). For a detailed description of each calculation step, the reader is referred to [Turquety and al. 2013](#). A summary is also provided in [Chapitre 2](#) of this thesis.

For this study, two nested domains were defined (MEDa and MEDb) in order to model the synoptic scale over a large African-Euro-Mediterranean domain and the local scale in the Euro-Mediterranean domain. The results are presented only for the finer-resolved domain (MEDb), extending from  $4^\circ\ W$  to  $34^\circ\ E$  and from  $24.7^\circ\ N$  to  $45.4^\circ\ N$ , with a horizontal resolution of  $20\ km$ . The vertical grid contains 18 uneven hybrid sigma-p levels, representing the atmospheric column from the surface to  $200\ hPa$ .

Since we are interested in quantifying the relative impact of fire emissions in the local and regional aerosol load, we have conducted two separate simulations, without (*REF*) and with (*FIRES*) fire emissions. Dust emissions are included in both simulations, but contributions from dust can be easily tracked using the CHIMERE outputs (since DUST species does not interact with other parts of the chemistry in the current version of the model).

## Simulation of aerosol optical properties

The simulation of aerosol optical properties and lidar attenuated backscattered profiles from CHIMERE concentration fields are performed using the OPTSIM software, as described in [Stromatas et al. 2012](#) (and in [Chapitre 5](#) of this thesis). It allows the calculation of the AOD and other optical properties, such as the Angström Exponent, from simulated aerosol concentrations. It also allows the simulation of Level 1 lidar observations (i.e attenuated backscatter profiles) as well as of Level 2 aerosol lidar products like the backscatter and extinction coefficients.

The aerosol size distribution in CHIMERE is represented by 12 size sections for this study. The effect of relative humidity on the size of water soluble aerosols and thus on their optical properties (e.g. refractive index) is accounted for by using a growth model as

described in Hänel (1976). All particles are considered spherical and a homogeneous internal mixing of the different chemical species is selected to define a mean particle refractive index and density. Finally, the multiple scattering effects are not taken into account.

### 6.3 The case study of summer 2007

As discussed above (cf Section 6.1), we are focusing on the summer (June-August) of 2007 which was marked by 7 major aerosol-related pollution events (dust and fires), listed in Tableau 6.1 and illustrated in Figure 6.1. We analyze three severe episodes (fire, dust and mixed) selected because of their intensity, uniqueness and detection by satellite sensors and ground stations.

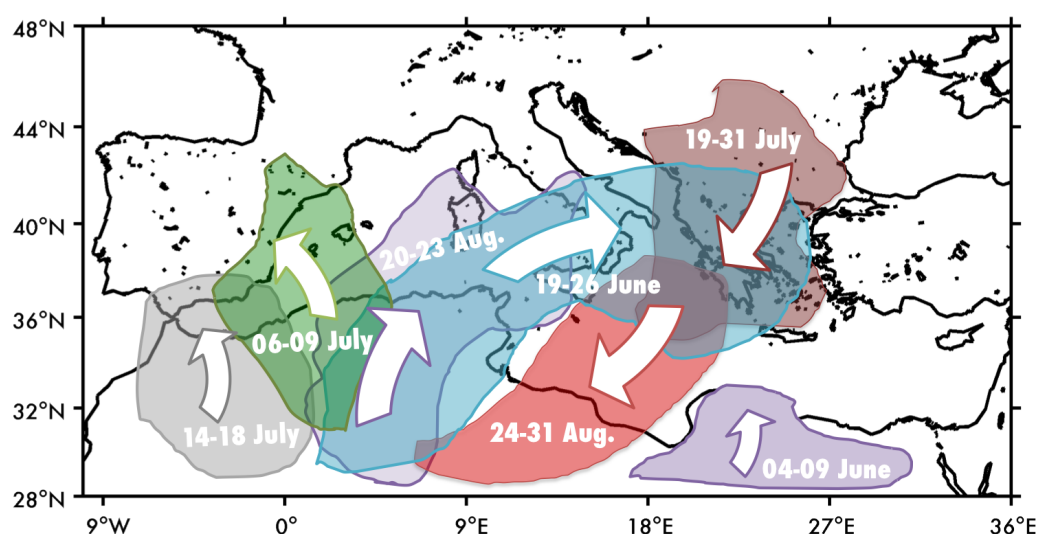


Figure 6.1 – Main aerosol-related pollution events between June and August of 2007. The contours and the arrows define respectively the approximate geographical extension and direction of the aerosol plumes.

Event	Date	Location	Transport	Type
1	04-07 June	C.E. MB	westward	Dust
<b>2</b>	<b>19-26 June</b>	<b>C. MB</b>	<b>northward</b>	<b>Dust</b>
3	06-09 July	W. MB	westward	Dust
4	14-18 July	W. MB	westward	Dust
<b>5</b>	<b>19-31 July</b>	<b>E. Eur. &amp; E.MB</b>	<b>south-westward</b>	<b>Fires</b>
6	20-23 Aug.	C. MB	northward	Dust, Fires
<b>7</b>	<b>24-31 Aug.</b>	<b>E. MB</b>	<b>south-westward</b>	<b>Fires, Dust</b>

Tableau 6.1 – List of the main aerosol episodes between June - August 2007. Episodes analyzed in this study are marked in bold. MB : Mediterranean Basin, C. : Central, W. : West, E. : East.



### 6.3.1 Meteorological conditions

The atmospheric circulation during summer in the Mediterranean is generally determined by the North Atlantic Ocean anticyclone (also known as Azores High), which significantly influences Europe, and the Asian monsoon Low originating from the Indian Ocean and the Middle East (e.g. [Lelieveld et al. 2002](#); [Kallos et al. 2007](#)) that extends towards the Mediterranean region. Large-scale subsidence, linked to the descending branch of the Hadley circulation and the Asian monsoon, dominates over the region leading to warm, dry conditions. The quasi-permanent east-west surface pressure gradient results in a general trend of north to south winds, like the Etesians in the eastern Mediterranean. These meteorological patterns govern the transport of aerosols released from various sources around the Mediterranean region. We can identify these typical summer characteristics of the Mediterranean region in the WRF-simulated mean sea level pressure for the summer of 2007 ([Figure 6.2](#)). A high pressure system (the Azores anticyclone) is visible at the north-western part of the region, originating from the Atlantic ocean and extending toward the south-western Mediterranean basin. On the eastern part of the Mediterranean, a low pressure system (i.e the Asian monsoon Low) is dominant. The mean 2m temperature ([Figure 6.2](#)) reveals higher temperatures in Eastern Europe and south-eastern Mediterranean compared to the western part of the Euro-Mediterranean domain. Mean summer temperatures in Eastern Europe and Greece reach locally 25-30°C.

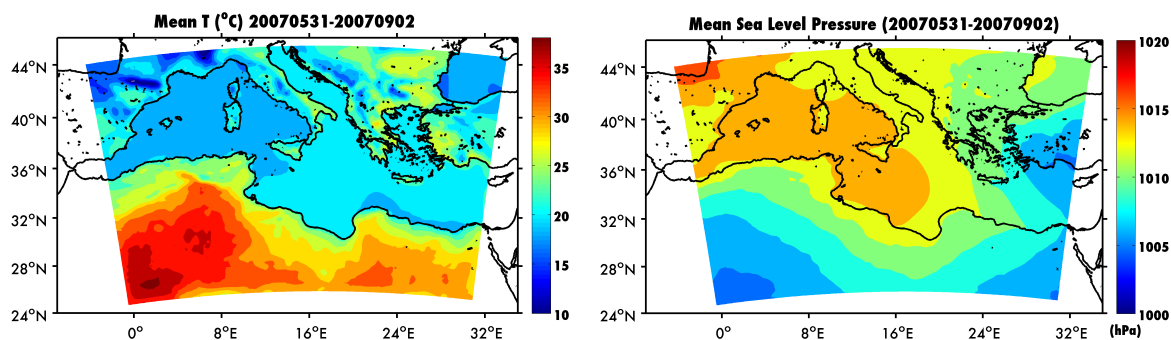


Figure 6.2 – Mean 2m temperature (°C) and sea level pressure (hPa) in the simulated domain for the summer of 2007 and the domain MEDb.

The summer of 2007 was characterized by several heat waves in many areas of south and east Europe. In particular as described in [Founda and Giannakopoulos \(2009\)](#), a series of consecutive anticyclonic anomalies were recorded over the central Mediterranean region, transferring hot air masses from northern Africa towards Eastern Europe. In addition to horizontal advection, adiabatic heating caused by a large scale subsidence from the upper atmosphere contributed to the abnormally high surface temperatures. Moreover, the winter and spring of 2007 were also marked by negative precipitation anomalies ([Luterbacher et al., 2007](#)). As a result, the precipitation and soil moisture deficits further amplified the abnormally high summer temperatures. These were mostly located in eastern Mediterranean (Greece, Italy) and the Balkan peninsula, as highlighted by the standard deviation of the 2m temperature based on WRF simulations for the summer of 2007 in [Figure 6.3](#).

The July heat wave strongly affected most of the Balkan peninsula, with daily temperatures up to 40 °C. The heat wave over Greece during the last week of August, although slightly less intense, coincided with strong north-easterly winds (e.g. [Kaskaoutis et al. 2011](#); [Liu et al. 2009](#)). Both heat waves during July and August 2007 co-occurred with two severe

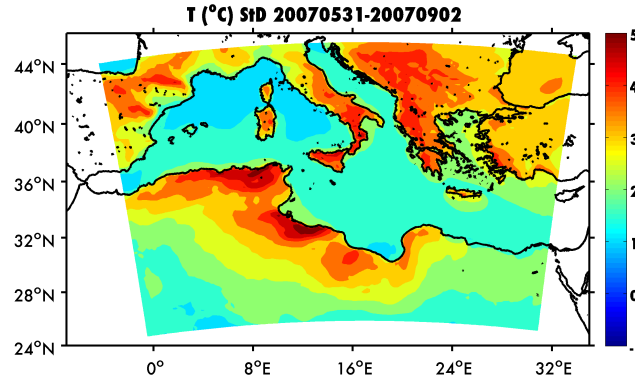


Figure 6.3 – Standard deviation of the 2m temperature based on WRF simulations for the summer of 2007.

wildfire episodes in the south-eastern Europe (19-31 July and 24-29 August). Apart from increasing fire spread, the prevailing winds transported the wildfire plumes far away from the sources to a south-western direction.

### 6.3.2 Fire activity

Fire activity in Europe presents a significant inter-annual variability, with most of wildfires episodes occurring during summer when the meteorological conditions are favorable (e.g. Amiridis et al., 2010, and references therein). The location of the average area burned per year is given in Figure 6.4, based on MODIS observations for the time interval 2004-2010. The vast majority (about two-thirds) of the wildfire episodes in Europe occur in the southern european countries (Portugal, Spain, France, Italy, Greece) with about 500 000 *ha* being burned every year (Barbosa et al., 2009). While in the first case (Greece, Portugal, Italy, Spain) fires often have an accidental or criminal anthropogenic origin, in the cropland-dominated regions of eastern Europe they are usually due to agricultural practices like waste burning and land clearing (e.g. Korontzi et al. 2006; Stohl et al. 2007). The summer of 2007 was particularly marked by severe fire episodes in eastern Europe during the last days of July (19-31) and southern Greece in the end of August (24-31). The location of fires in 2007 and the extent of the area affected are shown in Figure 6.4.

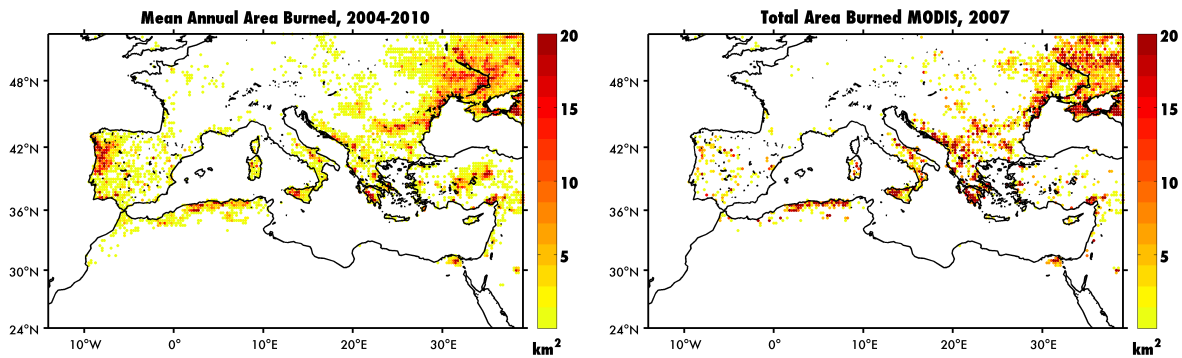


Figure 6.4 – Location of the fires based on the total Burned Area (in  $\text{km}^2$ ) MODIS product for the time interval 2004-2010 (left) and 2007 (right). Data are shown in a  $0.25^\circ \times 0.25^\circ$  resolution.

We examine closely two different wildfire episodes that occurred in eastern Europe between 19-31 July (left) and 24-31 August (right). The location of the total burned area provided by MODIS for those two periods is shown in Figure 6.5.

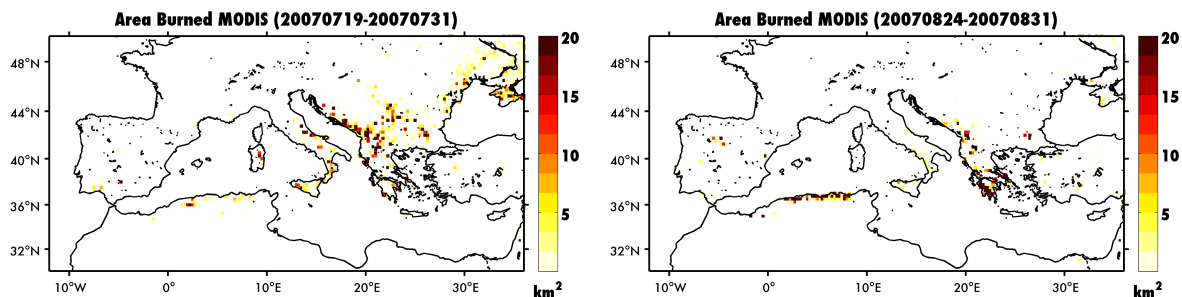


Figure 6.5 – Location of the fires based on the total Burned Area (in  $\text{km}^2$ ) MODIS product for 19-31 July and 24-31 August. Data are shown at a resolution of  $0.25^\circ \times 0.25^\circ$ .

### 6.3.3 Emissions

Examples of the spatial distribution of emissions for the summer of 2007 from various sources are shown in Figure 6.6. The distribution of anthropogenic  $\text{SO}_2$  emissions indicates the pollution sources linked to human activities (e.g. industry, power supply sector, fossil fuel combustion). Local hotspots ( $\approx 9 \text{ t}$ ) are found all around Eastern Europe while some additional sources are found in coastal sites all around the Mediterranean due to shipping emissions. Biogenic isoprene ( $\text{C}_5\text{H}_8$ ) is an important biogenic volatile organic compound of the terrestrial biosphere that acts as a precursor for the formation of secondary organic aerosols (SOA). Maximum values of total summertime  $\text{C}_5\text{H}_8$  emissions in the examined domain reach locally 3-5  $\text{t}$ .

Dust emissions originating from the north-western part of Africa are the dominant aerosol source in the region with local hotspots exceeding 22  $\text{t}$ . Consistently with fire activity, most of the fire emissions are located in south-central and eastern Europe and Mediterranean and in north-western Africa. The highest OCAR fire emissions are found in eastern Europe with almost 10  $\text{t}$  being emitted in local maxima from June to August of 2007.

### Comparison of the fire emissions to the GFED inventory

We perform a comparison between the fire emissions used here and the widely used Global Fire Emissions Database (GFED) inventory (van der Werf et al., 2010). The area burned is also estimated from the MODIS measurements and the fuel loadings are calculated based on vegetation and carbon cycle modeling. The emission factors used are from Andreae and Merlet 2001.

Figure 6.7 illustrates the OCAR emissions for the summer of 2007 in Eastern Europe and Greece respectively. We note a general agreement in the temporal variability between the two emissions datasets however the emissions used in this study are systematically higher than GFED.

This is more pronounced in Eastern Europe, especially for the fire episode of July (cf Section 6.4.3) where APIFLAME emissions are significantly higher than GFED (by a factor of 8 for the peak levels). In the case of the Greek fires, the agreement is better but the GFED OCAR emissions are lower (by a factor of 1.8) than the emissions used in this study.



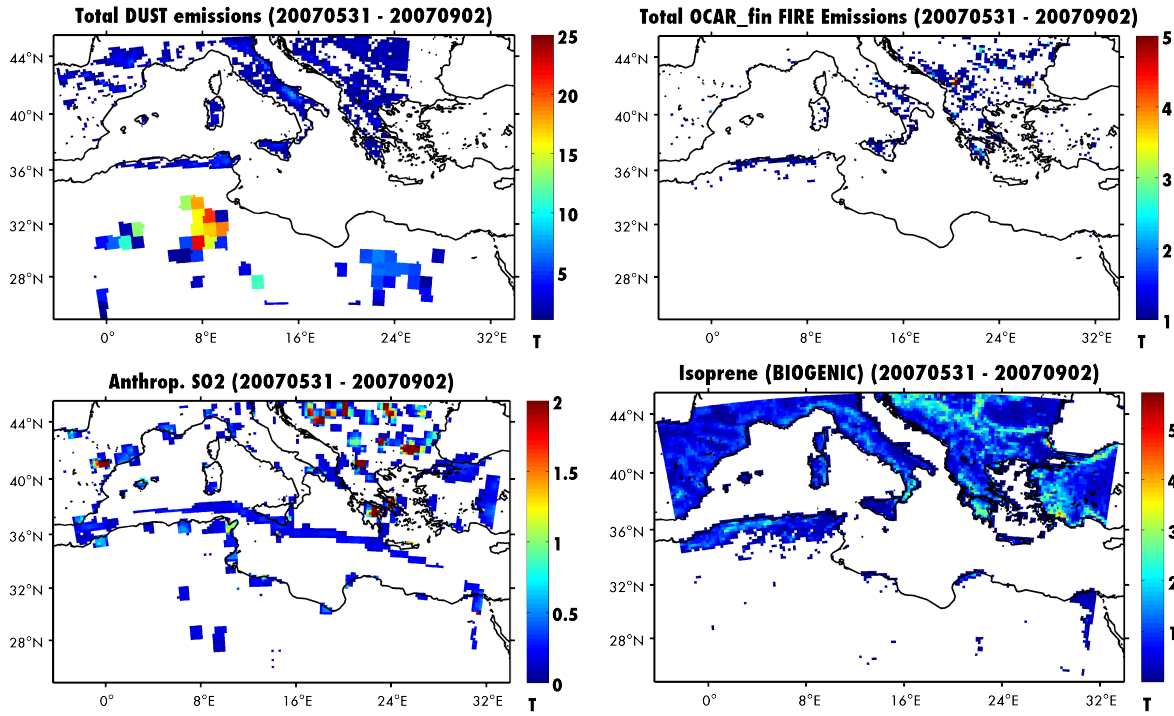


Figure 6.6 – Spatial distribution of total Dust, Organic Carbon (fires),  $\text{SO}_2$  (anthropogenic) and Isoprene (biogenic) emissions (in t) for the summer of 2007.

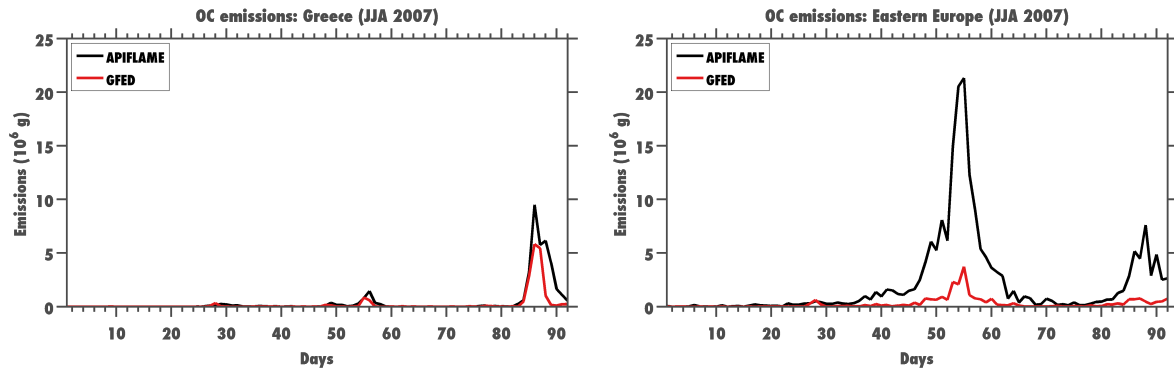


Figure 6.7 – Comparison of the Organic Carbon (OC) fire emissions used in this study to Global Fire Emissions Database (GFED) inventory for Greece and E. Europe.

### 6.3.4 Observed aerosol hotspots

The main PM hotspots in the Euro-Mediterranean for the summer of 2007, identified from ground-based (AIRBASE, AERONET) and space-based (MODIS/AQUA) observations are illustrated in Figure 6.8 (left). Regarding AIRBASE measurements, the location of the stations with a mean concentration greater than  $40 \mu\text{g m}^{-3}$  or a daily concentration of  $50 \mu\text{g m}^{-3}$  for more than 35 days (both *annual* threshold limits) is plotted. For AERONET, the average AOD is shown for stations which recorded mean AOD levels greater than the 90<sup>th</sup> percentile. The MODIS AOD for JJA 2007 is shown for average values greater than 0.25 at 550 nm. The highest aerosol levels are identified in Eastern Europe and the

Balkans peninsula, in the north of Italy around the heavily industrialized Po Valley as well as in north-western Africa and the neighboring Spanish and Italian coastlines.

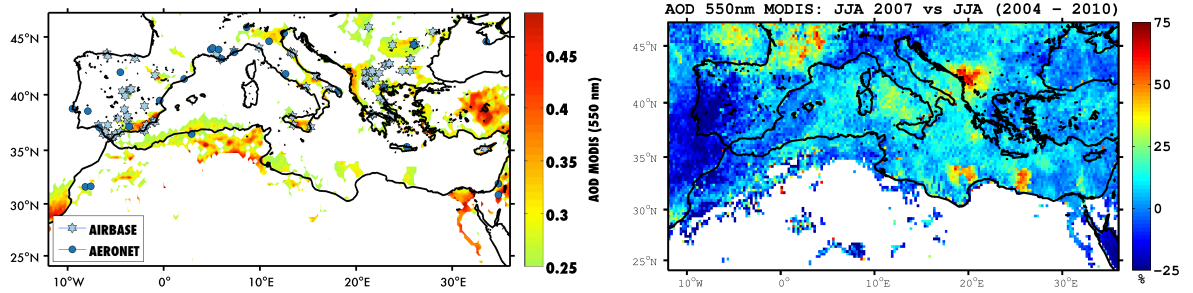


Figure 6.8 – PM hotspots in the Euro-Mediterranean for the summer of 2007 based on ground (AIRBASE, AERONET) and space (MODIS/AQUA) observations : The illustrated AIRBASE and AERONET stations observed mean concentration levels greater than both annual threshold limits and mean AOD levels greater than the 90<sup>th</sup> percentile respectively. The average AOD at 550 nm from MODIS is shown for values higher than 0.25 to outline polluted areas. The relative difference (in %) of JJA 2007 based on 7 years (JJA, 2004-2010) of MODIS AOD observations is shown on the right.

The significance of the fire episodes (Section 6.3.2) is highlighted by the relative difference of JJA 2007 AOD, compared to the average summer AOD of 2004-2010, shown in Figure 6.8 (right). A maximum increase of 80% (or 0.65 in absolute AOD value) is observed in the western Balkans while the mean relative difference reaches 49% (0.32 in absolute AOD value). In the proximity of the source area of the Greek fires the difference is smaller, with a maximum increase of 43% (0.29) and an average of 17% (0.23). A high relative difference in JJA 2007 AOD is also observed in north-western Europe but the AOD absolute values are low ( $< 0.25$ ) and are not classified as a hotspot (cf Figure 6.8).

## 6.4 Results

### 6.4.1 General evaluation of the CHIMERE simulations based on surface networks

In this section, we present a general evaluation of the CHIMERE simulations, without (*REF*) and with (*FIRES*) fire emissions, for the period and area of interest based on surface PM concentration and aerosol optical properties measurements. The measurement stations selected for this comparison are listed in [Tableau 6.2](#) for the AIRBASE stations and in [Tableau 6.3](#) for the AERONET stations. Stations with insufficient amount of measurements for statistically significant conclusions are ruled out.

AIRBASE			
Station	Longitude	Latitude	Country
BG0053R *	24.739	41.696	Bulgaria
ES0010R *	3.316	42.319	Spain
ES0012R *	-1.100	39.083	Spain
ES0014R *	0.735	41.394	Spain
ES1400A *	-0.152	41.506	Spain
ES1418A *	-1.143	41.763	Spain
ES1441A	-0.091	40.637	Spain
ES1488A	-2.501	42.653	Spain
ES1489A	-3.231	42.875	Spain
ES1491A	-2.704	43.406	Spain
ES1542A	0.373	40.555	Spain
ES1543A *	-0.169	40.735	Spain
ES1599A	-2.155	43.251	Spain
ES1660A	-1.586	42.208	Spain
ES1661A	-1.627	42.075	Spain
ES1662A	-1.808	42.308	Spain
ES1802A *	-3.467	40.910	Spain
ES1805A *	-3.703	40.781	Spain
ES1806A	-3.222	40.287	Spain
ES1811A *	-3.277	40.167	Spain
ES1827A *	2.688	39.679	Spain
IT0459A *	13.342	43.599	Italy
IT0992A	13.674	41.670	Italy
IT1464A *	9.556	45.498	Italy
IT1519A	8.168	44.414	Italy
IT1522A **	7.941	45.018	Italy
IT1672A	10.430	44.300	Italy
MK0042A	20.699	41.536	FYROM
RO0072A *	26.117	44.617	Romania

Tableau 6.2 – List of the AIRBASE stations used in this study for the evaluation of CHIMERE in the Euro-Mediterranean region. \*  $PM_{2.5}$  measurements also available, \*\*  $PM_{2.5}$  measurements only.

### Evaluation of the simulated $PM_{10}$ and $PM_{2.5}$ concentrations

The horizontal resolution being chosen for regional analysis, is too coarse for comparisons to urban measurement stations (e.g. [Stern et al. 2008](#); [Cuvelier et al. 2007](#)). Therefore, we mainly consider stations that are located in rural background areas over various Euro-Mediterranean countries.

<b>AERONET</b>			
<b>Station</b>	<b>Longitude</b>	<b>Latitude</b>	<b>Country</b>
Barcelona	2.117	41.386	Spain
Venise	12.508	45.314	Italy
Avignon	4.878	43.933	France
Modena	10.945	44.632	Italy
Rome Tor Vergata	12.647	41.840	Italy
Lecce University	18.111	40.335	Italy
Villefranche	7.329	43.684	France
FORTH CRETE	25.282	35.333	Greece
Carpentras	5.058	44.083	Spain
Toulon	6.009	43.136	France
Blida	2.881	36.508	Algeria
Messina	15.567	38.198	Italy
OHP OBSERVATOIRE	5.710	43.935	France
Sevastopol	33.517	44.616	Ukraine
Burjassot	-0.418	39.508	Spain
Bucharest Inoe	26.030	44.348	Romania
Le Fauga	1.285	43.384	France

Tableau 6.3 – *List of the AERONET stations used in this study for the evaluation of CHIMERE in the Euro-Mediterranean region. \*  $PM_{2.5}$  measurements also available, \*\*  $PM_{2.5}$  measurements only.*

Comparisons for  $PM_{10}$  reveal a mean correlation of 0.63 along with a +18.08% ( $2.84 \mu\text{g m}^{-3}$ ) mean normalized bias for the *FIRES* simulation while for the *REF* simulation the mean correlation is 0.56 with a +10.07% ( $1.04 \mu\text{g m}^{-3}$ ) mean normalized bias. These results are shown in [Tableau 6.4](#) for each station and summarized in the map of [Figure 6.9](#) (for the *FIRES* simulation).

We note a general tendency of the model to overestimate the  $PM_{10}$  concentration levels. This positive bias can be partly attributed to an overestimation of the local erosion and resuspension of mineral dust in Europe in CHIMERE. [Bessagnet et al. 2008](#) showed that their relative contribution may be non negligible and needs to be taken into account. However, the governing processes are complicated and not yet fully understood. The parametrization currently used in CHIMERE relies on the resuspension formula of [Loosmore and Cederwall \(2004\)](#) and the scheme for the corresponding emissions depends only on the wetness of the surface ([Vautard et al., 2005](#)). [Figure 6.10](#) presents an example of dust emissions around two AIRBASE stations in Europe (ES1418A in Spain and IT1464A in Italy) within an area of  $\pm 0.5^\circ$ , and the corresponding  $PM_{10}$  for CHIMERE and AIRBASE. The simulated  $PM_{10}$  is represented by the sum of all model species to highlight the relative contribution of dust. The average contribution (in %) of each species to  $PM_{10}$  for the entire period examined is also shown. Although the relative contribution of dust is almost equivalent in both cases (67.9 against 70.5%), the total dust emissions in the first case (station ES1418A) are significantly lower (8.4 against 22.7 t). We deduce that the first case corresponds to long-range transport from North Africa, and the second case to a regional dust event due to resuspension / wind erosion. We find higher correlation for the long-range transport event (0.64 against 0.32) and lower relative mean bias (-12.6 against 53.3%), suggestion that European dust emissions from resuspension/wind erosion need to be better represented in the model.

The model's performance for  $PM_{2.5}$  is slightly lower. The average correlation for the reference simulation is 0.52 with a +8.66% ( $0.35 \mu\text{g m}^{-3}$ ) mean normalized bias. In the simulation with fire emissions the correlation is slightly better (0.58) while the mean nor-

Station	$PM_{10}^{obs}$ ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )	$PM_{10}^{FIRES}$ $\mu\text{g m}^{-3}$	$PM_{10}^{REF}$ $\mu\text{g m}^{-3}$	$R^{FIRES}$ -	$R^{REF}$ -	$BIAS^{FIRES}$ $\mu\text{g m}^{-3}$	$BIAS^{REF}$ $\mu\text{g m}^{-3}$	# Obs (days)
BG0053R	18.49	32.86	21.28	0.69	0.28	14.37	2.79	64
ES0010R	17.53	26.60	26.04	0.49	0.44	9.07	8.51	88
ES0012R	19.81	22.13	21.45	0.60	0.53	2.32	1.64	86
ES0014R	17.46	28.13	27.22	0.76	0.65	10.67	9.76	89
ES1400A	18.07	22.80	22.36	0.45	0.46	4.73	4.29	78
ES1418A	27.00	23.61	23.14	0.67	0.64	-3.39	-3.86	95
ES1441A	17.87	21.35	20.04	0.75	0.64	3.48	2.17	93
ES1488A	16.13	21.05	20.57	0.71	0.66	4.92	4.44	94
ES1489A	17.94	19.70	19.20	0.72	0.67	1.76	1.26	95
ES1491A	18.66	20.25	19.78	0.71	0.67	1.59	1.12	95
ES1542A	22.24	26.96	25.37	0.63	0.47	4.72	3.13	66
ES1543A	16.31	21.31	20.03	0.54	0.41	5.00	3.72	95
ES1599A	17.89	18.78	18.42	0.69	0.62	0.89	0.53	91
ES1660A	27.91	26.31	25.85	0.71	0.68	-1.60	-2.06	95
ES1661A	22.81	24.76	24.33	0.60	0.58	1.95	1.52	95
ES1662A	30.76	26.10	25.71	0.68	0.63	-4.66	-5.05	95
ES1802A	26.06	18.60	18.30	0.79	0.77	-7.46	-7.76	94
ES1805A	31.29	22.33	22.11	0.76	0.74	-8.96	-9.18	93
ES1806A	27.60	22.57	22.18	0.66	0.62	-5.03	-5.42	95
ES1811A	30.90	21.79	21.06	0.57	0.61	-9.11	-9.84	93
ES1827A	22.75	26.18	25.49	0.19	0.15	3.43	2.74	49
IT0459A	34.74	41.23	39.98	0.58	0.58	6.49	5.24	81
IT0992A	24.13	28.07	25.56	0.56	0.54	3.94	1.43	92
IT1464A	20.32	31.16	30.88	0.29	0.32	10.84	10.5	75
IT1519A	17.59	26.49	25.67	0.65	0.60	8.90	8.08	93
IT1672A	12.09	23.64	22.73	0.62	0.56	11.55	10.6	68
MK0042A	28.00	40.25	27.92	0.65	0.49	12.25	-0.08	85
RO0072A	28.92	25.76	17.71	0.50	0.13	-3.16	-11.21	81
Mean	-	-	-	<b>0.63</b>	<b>0.56</b>	<b>18.08%</b>	<b>10.07%</b>	-

Tableau 6.4 – Statistical comparison of modeled (*CHIMERE*) and observed (*AIRBASE*) daily mean  $PM_{10}$  surface concentrations, for the summer (JJA) of 2007.

malized bias increases to 17.78% ( $1.71 \mu\text{g m}^{-3}$ ). The results per station are detailed in [Tableau 6.5](#) and summarized in the map of [Figure 6.9](#) (for the *FIRES* simulation).

For regions and time periods affected by fires, similar performance is found for  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$ . The addition of fire emissions improves the correlation for both  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  but also increases the mean relative bias. However, the few number of measurement sites in this regions suggest that these conclusions may not be representative of the whole region. As shown in [Figure 6.11](#), fires have a significant impact for only three of the selected stations, and the most important biases found in eastern Europe (Bulgaria and FYROM) where the mean concentration is overestimated by 45 and 70% ( $\approx 12$  and  $14 \mu\text{g m}^{-3}$  respectively). However, the correlation is significantly improved by 0.41 and 0.16 respectively. The relative contribution of fires for the main episode (end of July) appears overestimated by a factor 2-3 for these two rural stations. However, the comparison of  $PM_{10}$  levels for other neighboring stations reveals that the peak values are correctly simulated. This suggests either errors in the horizontal distributions of fires, or a compensation of negative bias in urban and suburban stations (too high fire emissions compensating too low anthropogenic emissions). A detailed analysis of this fire episode is presented in the next section (cf [Section 6.4.3](#)).

Additional measurements of aerosol species (e.g.  $H_2SO_4$ ,  $NO_3$ ,  $NH_4$ ) are available at some EMEP measurements sites (<http://www.emep.int/>), allowing an evaluation of chemical speciation in models. However, the number of measurements is rather limited for the selected geographical area and period, and generally insufficient for a complete

Station	$PM_{2.5}^{obs}$ $\mu\text{g m}^{-3}$	$PM_{2.5}^{FIRES}$ $\mu\text{g m}^{-3}$	$PM_{2.5}^{REF}$ $\mu\text{g m}^{-3}$	$R^{FIRES}$ -	$R^{REF}$ -	$MNB^{FIRES}$ $\mu\text{g m}^{-3}$	$MNB^{REF}$ $\mu\text{g m}^{-3}$	# Obs (days)
BG0053R	13.85 $\pm$	21.14	14.54	0.54	0.18	7.29	0.69	95
ES0010R	9.34	14.71	13.95	0.55	0.54	4.83	4.21	86
ES0012R	10.82	13.92	13.28	0.60	0.51	3.15	2.44	84
ES0014R	13.49	15.72	14.92	0.76	0.62	2.24	1.39	82
ES1400A	10.15	14.79	14.13	0.51	0.53	3.45	3.05	78
ES1418A	13.69	13.87	13.44	0.77	0.74	0.18	-0.25	95
ES1543A	10.64	13.69	12.64	0.73	0.63	3.05	2.00	95
ES1802A	14.56	11.71	11.40	0.76	0.72	-2.86	-3.18	94
ES1805A	8.75	13.33	13.09	0.61	0.57	4.63	4.39	94
ES1811A	14.78	13.55	12.96	0.48	0.54	-1.18	-1.78	93
IT0459A	19.19	19.34	18.23	0.52	0.58	0.21	-0.86	83
IT1464A	14.20	17.34	16.86	0.34	0.42	2.91	2.62	41
IT1522A	13.50	15.51	15.16	0.50	0.50	2.01	1.66	78
RO0072A	22.25	16.02	10.86	0.46	0.16	-5.97	-11.37	83
Mean	-	-	-	0.58	0.52	17.78%	8.67%	-

Tableau 6.5 – Statistical comparison of modeled (CHIMERE) and observed (AIRBASE) daily mean  $PM_{2.5}$  surface concentrations, for the summer (JJA) of 2007.  $R$ ,  $MNB$  represent respectively the correlation and the mean normalized bias.

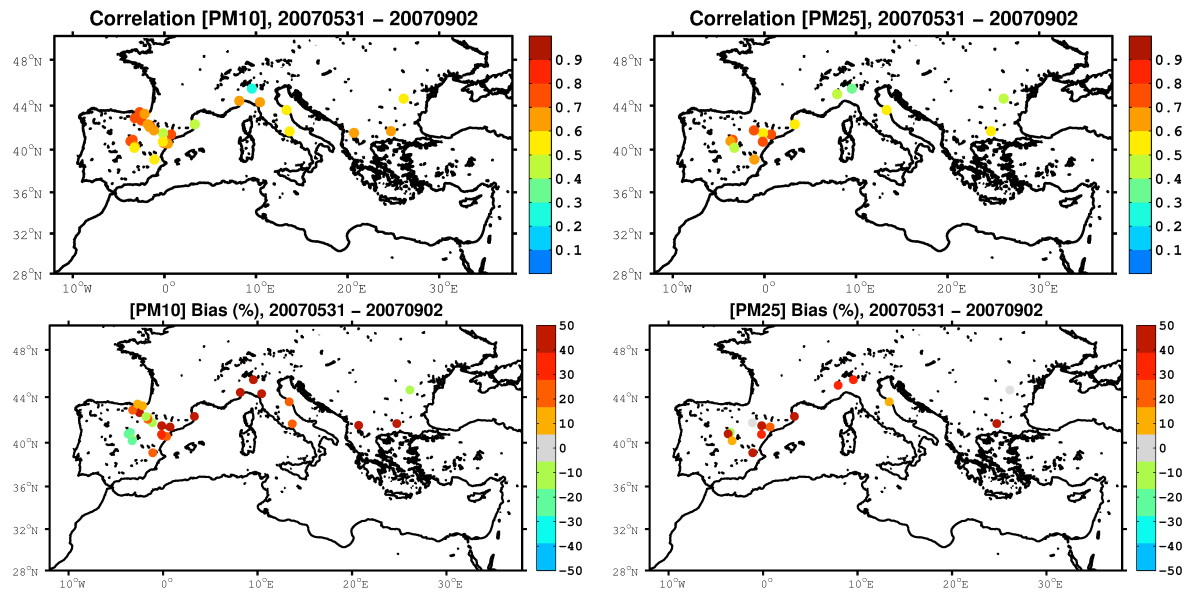


Figure 6.9 – CHIMERE skill scores for  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  daily average concentrations (in  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) over the summer (JJA) of 2007.

evaluation of the modeled aerosol chemical composition. Measurements from three stations were analyzed, two in France (FR0012R, FR0016R) and one in Italy (IT0001R). Figure 6.12 illustrates a comparison of CHIMERE and EMEP for the species  $H_2SO_4$ ,  $HNO_3$  and  $NH_3$  for the IT0001R (42.60°N, 12.38°E) station in Italy.

Based on three stations,  $H_2SO_4$  concentrations appear overestimated compared to EMEP by a factor of 1.8-2.5.  $HNO_3$  seems significantly underestimated (-88%) in the IT0001R station, but no other data are available. The addition of fire emissions improves the modeled concentrations and the simulated peak is in agreement with the observations for the episode at the end of July (cf Section 6.4.3), but this could result from error com-



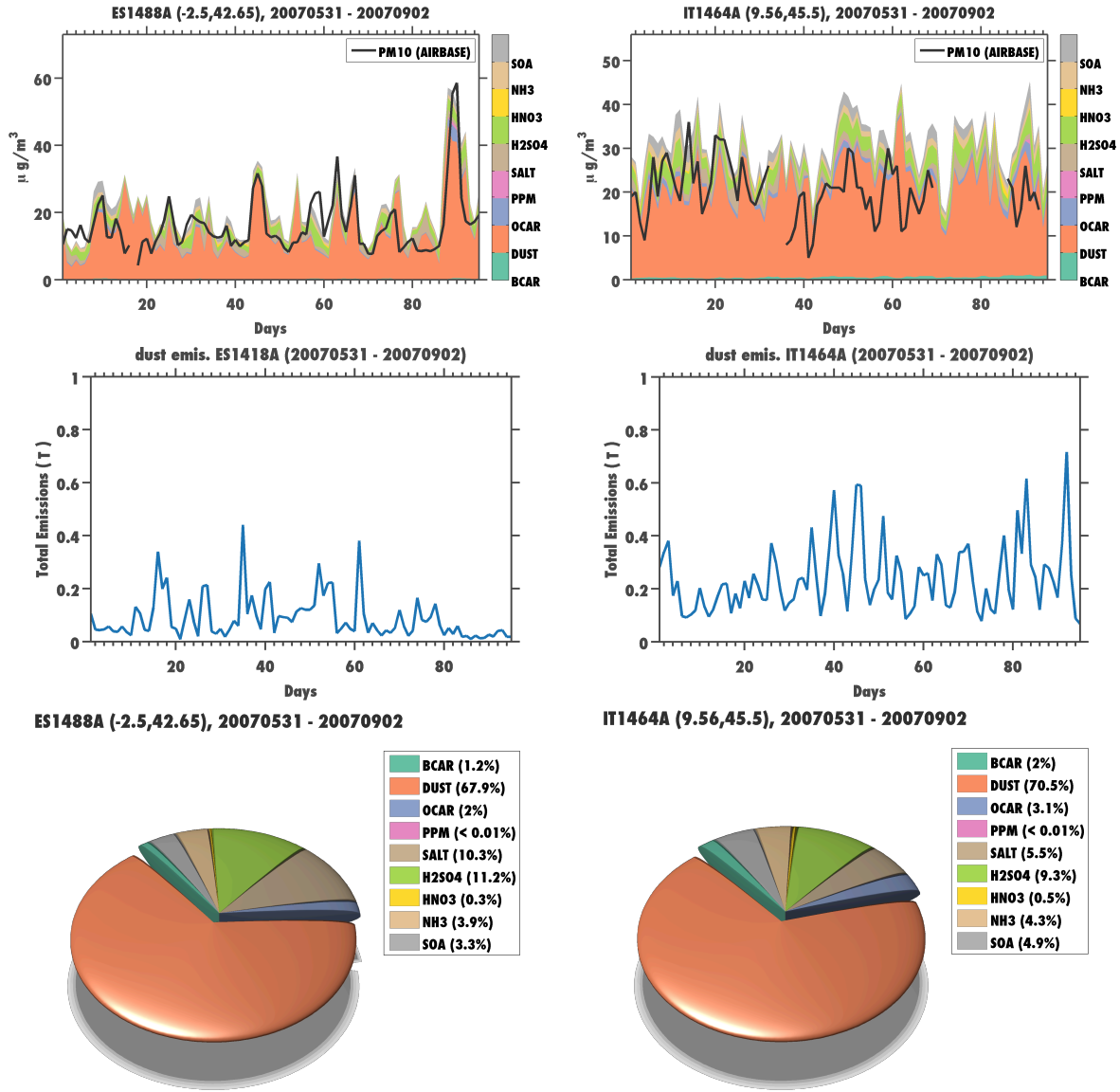


Figure 6.10 – CHIMERE and AIRBASE PM<sub>10</sub> daily average concentrations (in  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) with the corresponding contribution of the model species for two stations in Spain (left) and Italy (right) for the time interval June-August 2007. The corresponding dust emissions and the mean contribution of each species for the entire period are also shown.

pensations.  $\text{NH}_3$  is in general well simulated with no overall significant bias compared to EMEP measurements, except during the fire episode at the end of July where the simulated values are underestimated. The addition of fire emissions reduces this bias ( $1.2 \mu\text{g m}^{-3}$  for the REF simulation against  $3.2 \mu\text{g m}^{-3}$  for EMEP) but not sufficiently, and model values are underestimated by a factor of 2 ( $1.6 \mu\text{g m}^{-3}$ ) for the observed peak.

Considering the general skill scores of regional air quality models assessed in previous studies (e.g. Vautard et al. 2009; Honoré et al. 2008), and considering the large uncertainties in both dust and fire emissions, we argue that CHIMERE is able to reproduce reasonably well the daily variability of the PM surface concentrations.

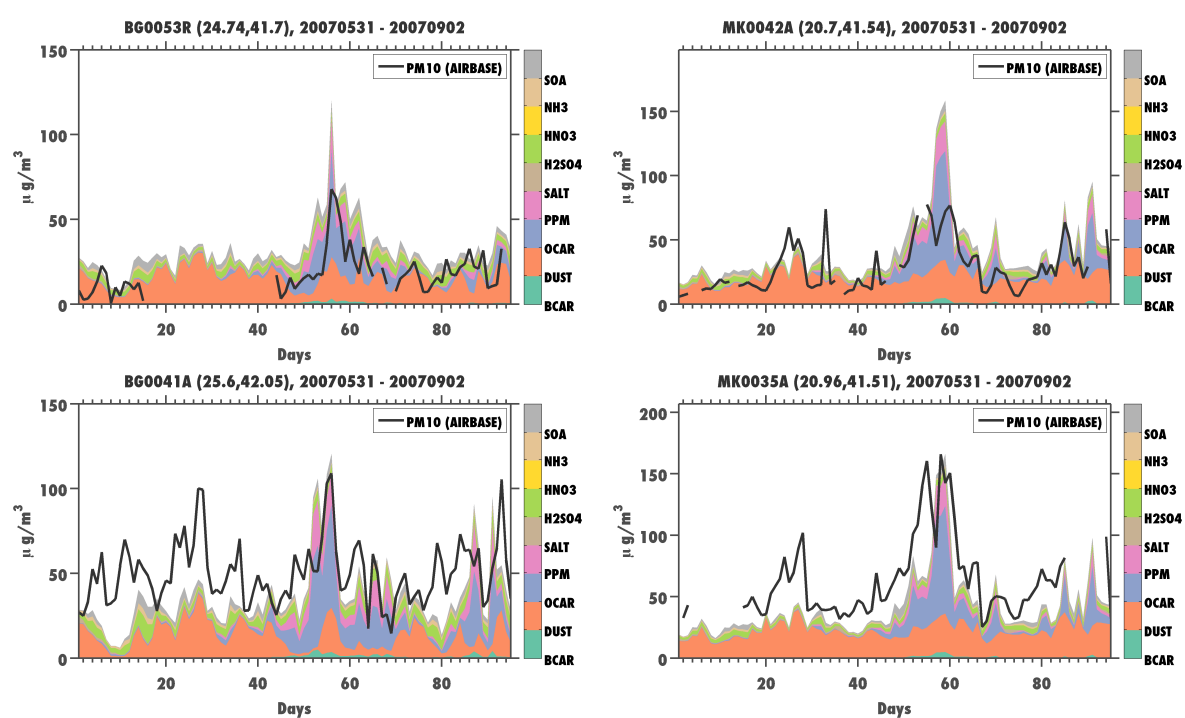


Figure 6.11 – *CHIMERE* and *AIRBASE* PM<sub>10</sub> daily average concentrations (in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) and the corresponding contribution of the model species for four stations in Bulgaria (left) and FYROM (right) that recorded the fires episodes of July 2007 in eastern Europe.



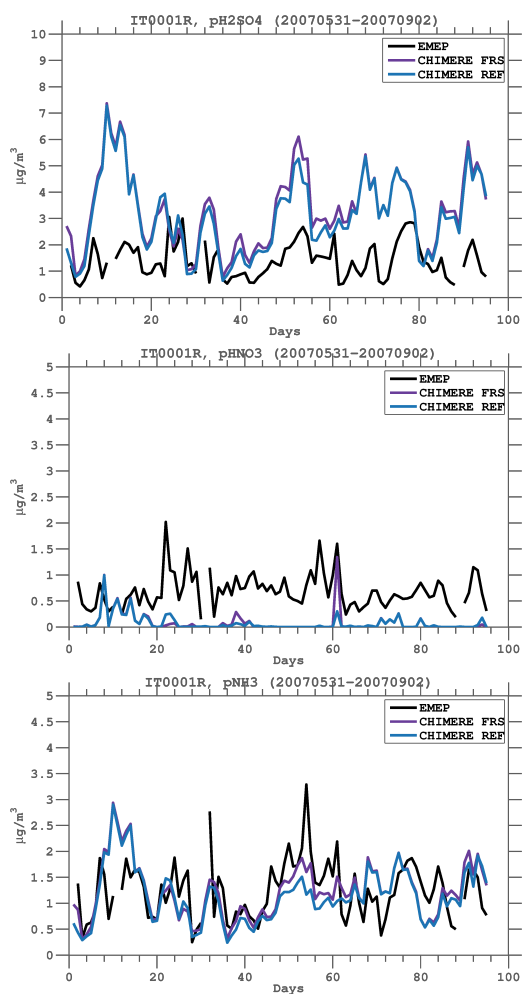


Figure 6.12 – Comparison of CHIMERE against EMEP measurements for  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{HNO}_3$  and  $\text{NH}_3$  (in  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) for the Montelibretti ( $42.60^\circ\text{N}, 12.38^\circ\text{E}$ ) station in Italy.

## Evaluation of the simulated aerosol optical depth

In order to evaluate the performance of CHIMERE in simulating the column-integrated aerosols we use data from 17 AERONET sites distributed all around the Euro-Mediterranean domain. The mean measured and simulated AOD ( $870\text{ nm}$ ) values and the corresponding model scores are given in [Tableau 6.6](#). The highest mean AOD at  $870\text{ nm}$  ( $0.26 \pm 0.14$ ) is observed at the Blida site (northern Algeria), which is in the vicinity of the northern Saharan domain, and is heavily affected by mineral dust episodes from the Sahara desert. The second highest mean AOD value ( $0.17 \pm 0.13$ ) is observed in Messina (southern Italy) which is the closest site to central northern Africa. It is also in those two sites that the largest bias in the model are found, highlighting a general underestimation of the column-integrated dust load in the model.

Station	$AOD_{obs}^{870}$	$AOD_{FIRES}^{870}$	$AOD_{REF}^{870}$	$R^{FIRES}$	$R^{REF}$	$BIAS^{FIRES}$	$BIAS^{REF}$	# Obs
Barcelona	0.12	0.07	0.06	0.59	0.52	-0.05	-0.05	78
Venise	0.1	0.09	0.08	0.53	0.51	-0.02	-0.03	87
Avignon	0.08	0.06	0.06	0.84	0.80	-0.01	-0.02	86
Modena	0.13	0.08	0.07	0.69	0.68	-0.04	-0.05	84
RomeTorVergata	0.14	0.08	0.07	0.66	0.63	-0.05	-0.06	90
Lecce University	0.14	0.09	0.08	0.62	0.70	-0.04	-0.05	87
Villefranche	0.09	0.07	0.06	0.65	0.65	-0.03	-0.03	87
FORTHCRETE	0.10	0.08	0.07	0.24	0.40	0.00	-0.02	95
Carpentras	0.09	0.06	0.06	0.78	0.74	-0.02	-0.02	90
Toulon	0.08	0.07	0.06	0.78	0.76	-0.01	-0.02	89
Blida	0.26	0.08	0.08	0.71	0.76	-0.17	-0.17	70
Messina	0.17	0.09	0.09	0.51	0.63	-0.08	-0.07	19
OHP OBS.	0.07	0.06	0.05	0.77	0.75	-0.01	-0.01	80
Sevastopol	0.13	0.08	0.07	0.38	0.49	-0.02	-0.04	73
Burjassot	0.14	0.06	0.05	0.66	0.62	-0.07	-0.08	84
Bucharest Inoe	0.14	0.10	0.09	0.54	0.40	-0.01	-0.04	50
Le Fauga	0.12	0.07	0.06	0.80	0.76	-0.04	-0.05	26
<b>Mean</b>	-	-	-	<b>0.63</b>	<b>0.63</b>	<b>-13.73%</b>	<b>-19.80%</b>	-

Tableau 6.6 – Statistical comparison of modeled (CHIMERE) and observed (AERONET) daily mean AOD ( $870\text{ nm}$ ) for the summer (JJA) of 2007. FIRES, REF refer to the simulations with and without fire emissions respectively.

We find that CHIMERE can satisfyingly reproduce the variability of the observed AOD with a mean correlation of 0.64 while it underestimates its magnitude, showing an overall mean bias of -21%. However, as shown in some examples in [Figure 6.13](#), this is mainly the result of an underestimation of the observed peaks while the "background" AOD levels are generally well simulated. A synopsis of these results per station, for the FIRES simulation is given in [Figure 6.14](#).

The comparison of the modeled  $\alpha$  against AERONET observations (not shown here), reveals a major drawback in the model's ability to correctly represent the mean aerosol size. More precisely, we find that the model's performance at  $500\text{ nm}$  is poorer than at  $870\text{ nm}$ . The mean correlation is smaller at  $500\text{ nm}$  (0.59 vs 0.66) while at the same time the mean relative bias is increased (-31,4 vs -11.4%). Since the model's ability to simulate the  $500\text{ nm}$  AOD is generally less satisfactory, we conclude that the fine mode fraction is in general inadequately represented in the model. The comparison of the fine mode AOD (given only at  $500\text{ nm}$ ) further supports this conclusion. We note that in order to remain consistent with the AERONET data, the fine/coarse mode AOD calculation in this study follows the AERONET methodology with the cut-off radius being the minimum radius between modes in the range of  $0.44$  to  $0.99\text{ }\mu\text{m}$ .

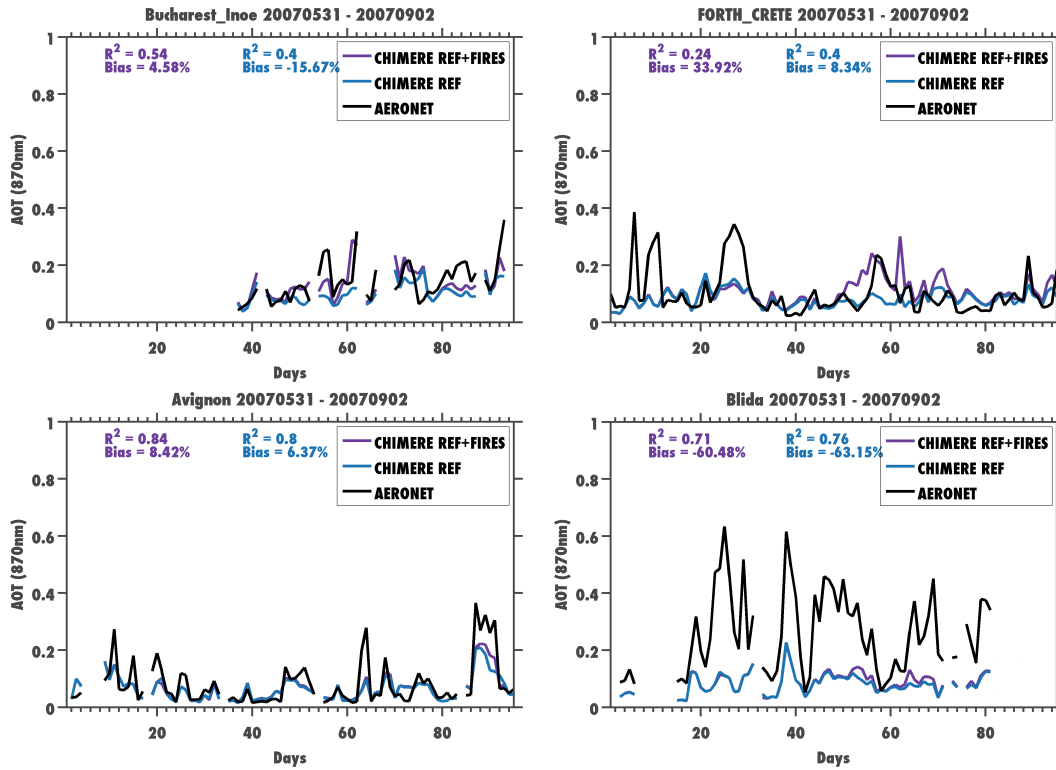


Figure 6.13 – Timeseries of the simulated (CHIMERE) and measured (AERONET) daily average AOD (870 nm) for 4 stations throughout the Euro-Mediterranean during the summer (JJA) of 2007.

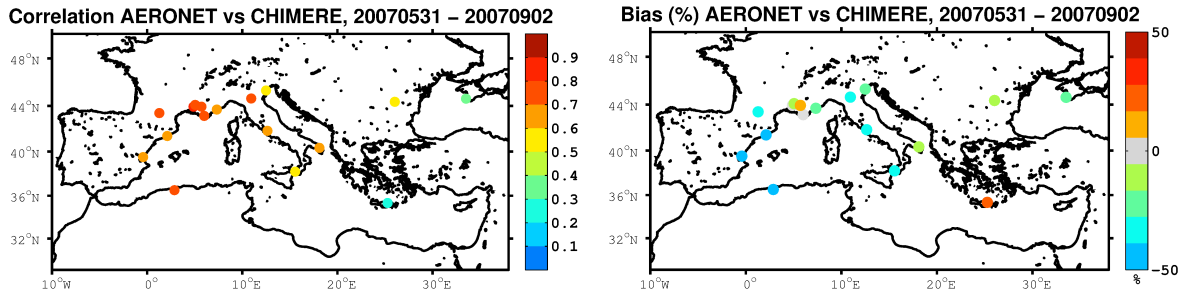


Figure 6.14 – Comparison of the simulated (CHIMERE) and measured (AERONET) daily average AOD (870 nm) for June-August 2007.

To illustrate this behavior, we present an example (Figure 6.15) for the Lecce site in Italy. A comparison of the simulated and observed volume size distribution for three different cases (23, 26 July and 31 August) is presented in Figure 6.16. The importance of an accurate representation of the particle-size distribution can be shown by examining the corresponding mass extinction coefficient ( $s_{ext}^m$ ). The AOD depends strongly on  $s_{ext}^m$  which varies significantly as a function of (particle) size and wavelength. The variance of the modeled  $s_{ext}^m$  was found to be quite small, indicating that its dependence on the chemical composition is much less important. For the three cases presented here, the simulated volume size distribution was found underestimated compared to the AERONET values.

We remind that the uncertainty in the retrieval of the volume size distribution is about 10% - 35% (cf [Section 6.2.1](#)). For the first day (23/07) the ratio of fine to coarse particles is correctly reproduced resulting in a small (3.12%) relative bias for  $\alpha$ . However the AOD is underestimated, indicating that emissions are too low (cf [Section 6.4.2](#)). The cases of 26 July and 31 August show a comparison between the modeled and observed volume size distributions for two recorded episodes of fires. In the first case, the average modeled fine mode is adequately simulated although slightly underestimated. The magnitude of the coarse mode is consistent with observations but the modeled coarse mode appears shifted towards smaller sizes. The resulting relative bias for  $\alpha$  is -36.71%. The corresponding modeled AOD is quite consistent with the observations although slightly underestimated (0.15 against 0.19 for AERONET). The second fire episode recorded at the Lecce site (31 August) is underestimated by the model and consequently the modeled fine mode is inadequately represented, which results in a -59.79% relative bias in the corresponding  $\alpha$ . A detailed analysis of these fire episodes is presented in [Section 6.4.3](#).

Finally, while some of the sources of discrepancy mentioned above (cf [Section 6.4.1](#)) certainly affect the AOD scores, the general negative bias in the modeled AOD, which is only seemingly in contrast with the overestimation of the ground PM levels, further highlights the importance of an accurate size distribution. The underestimation of the AOD can be attributed to an underestimation of the aerosol load in higher altitudes and/or to an inaccurate representation of the particle size distribution. More precisely, while the AOD is highly sensitive to aerosol size, the evolution of  $s_{ext}^m$  with size (as shown in [Figure 6.16](#)) reveals that the optically active part of the size distribution is rather narrow. As a result, any mass distributed out of this zone will contribute much less to the simulated AOD. Although size is crucial in aerosol modeling as it is strongly linked with their atmospheric lifetime and thus transport, as well as their radiative properties, measuring the size distribution at emission remains a challenging task and observational data are still scarce ([Sow et al., 2009; Shao et al., 2011](#)).

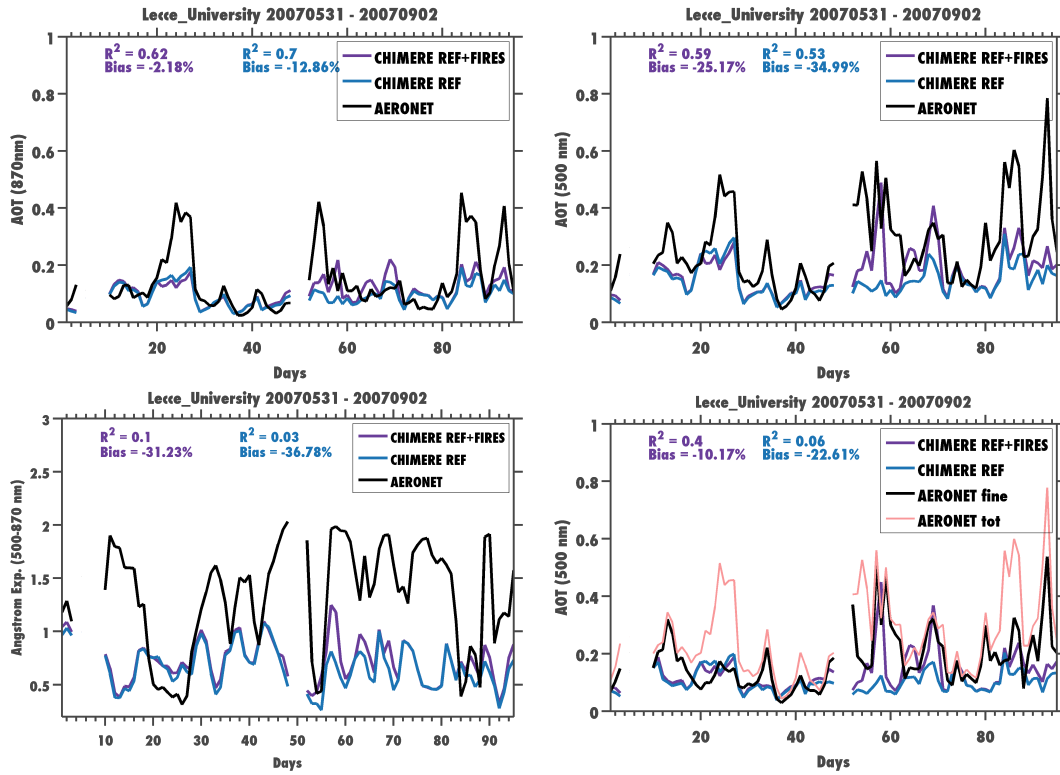


Figure 6.15 – Timeseries of the simulated (CHIMERE) and measured (AERONET) daily average AOD (870 nm), AOD (500 nm), Angström exponent (500-870 nm) and the fine mode AOD (500 nm) in Lecce (Italy) for the time interval June-August 2007.

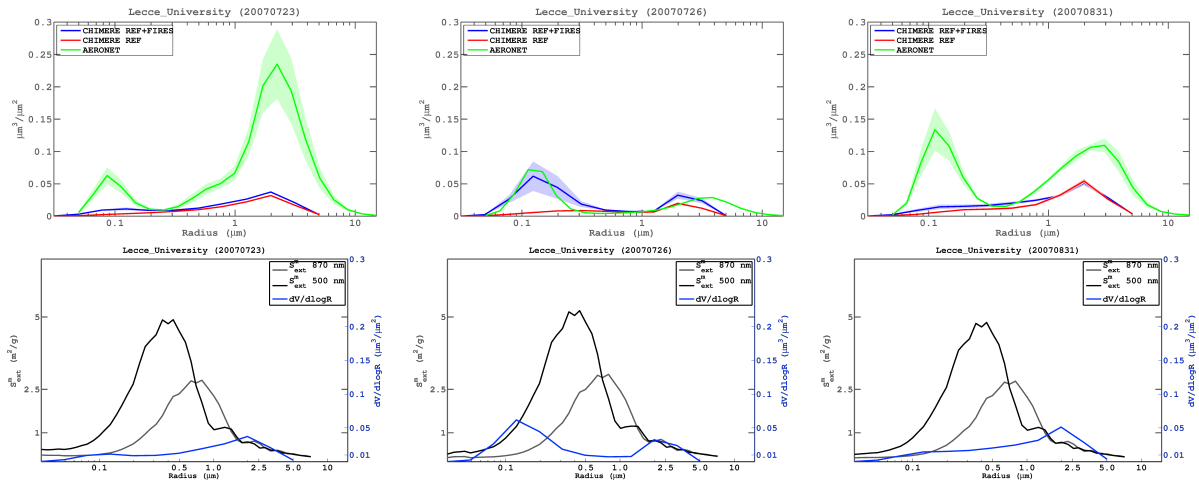


Figure 6.16 – Comparison of three modeled and observed volume size distributions in Lecce (Italy). The first case (July 23) focuses on a dust episode while in the second and third case (July 26 and August 31) a comparison between CHIMERE and AERONET for two fire episodes is shown. For illustrative purposes, the corresponding simulated mass extinction coefficient is also shown.

### 6.4.2 The 19-26 June Dust Episode

During 19-26 June a strong dust episode occurred in the central Mediterranean. The location of this episode as well as its extent are clearly seen in Figure 6.17, illustrating the corresponding AOD from MODIS. AOD peak values for this period range between 0.3 and 0.7 (at 550 nm). CHIMERE reproduces the observed plume but underestimates both its spatial extent and the absolute AOD value by a factor of 2-3. However, the modeled transport of the dust plume is consistent with observations from MODIS and provides a useful description on how the dust plume was transported. According to the model the dominant species is *DUST* whose column-integrated concentration is shown in Figure 6.17. Originating from north-western Africa and following a northeasterly direction the dust plume reached Italy and the Balkans.

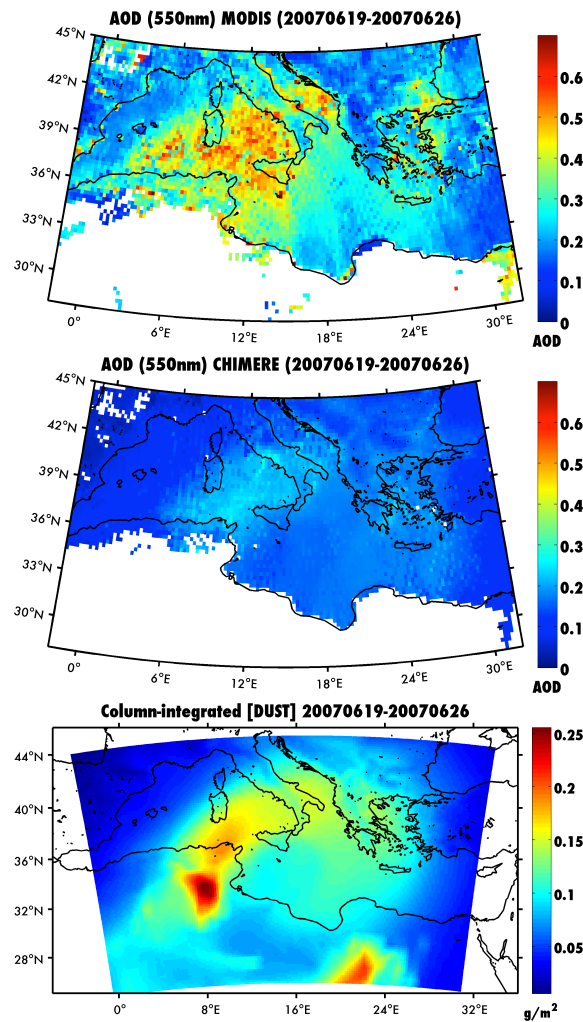


Figure 6.17 – Mean total AOD (at 550 nm) from MODIS/AQUA and CHIMERE and the corresponding column-integrated DUST concentration (g/m<sup>2</sup>) for the time interval 19-26 June 2007. MODIS data are regridded to the resolution of the model (20 x 20 km).

AERONET measurements at the Lecce site (Figure 6.15) recorded a sharp AOD increase during this event reaching 0.42 (at 870 nm) on June 24. The corresponding  $\alpha$  (0.38) indicates the presence of coarse particles. CHIMERE is heavily underestimating the obser-

ved AOD during this episode (0.12 on June 24) while the modeled  $\alpha$  is overestimated (0.62 on June 24) but reflects the dominant presence of coarse particles. The underestimation of both MODIS and AERONET AOD along with the overestimation of  $\alpha$  indicates an underestimation of the corresponding emissions as well as an inaccuracy in the particle-size distribution.

The underestimation of the dust emissions is also reflected in the comparison between CHIMERE and AIRBASE. The impact of this dust episode on  $PM_{10}$  surface concentrations far from the sources is evident in AIRBASE measurements in Italy and Malta (Figure 6.18). The daily  $PM_{10}$  levels were constantly above the pollution threshold during 21-27 June and average concentrations of 66.2 and 59.8  $\mu g m^{-3}$  were recorded in Italy ( $< 40^\circ N$ ) and Malta respectively. In comparison to the average inter-annual mean (2004-2010), the observed  $PM_{10}$  were higher by a factor of 1.7 - 2.1 during this pollution episode. CHIMERE underestimates significantly the observed surface concentrations (36.0 and 32.3  $\mu g m^{-3}$  respectively). The inaccuracy in the simulated horizontal structure of the plume partly explains the discrepancies between CHIMERE and AIRBASE, especially for the stations in Malta. An important increase in  $PM_{10}$  levels was also observed in the Balkans and several consecutive overpasses of the pollution threshold were recorded during this period (Figure 6.11) where CHIMERE PM levels are also underestimated.

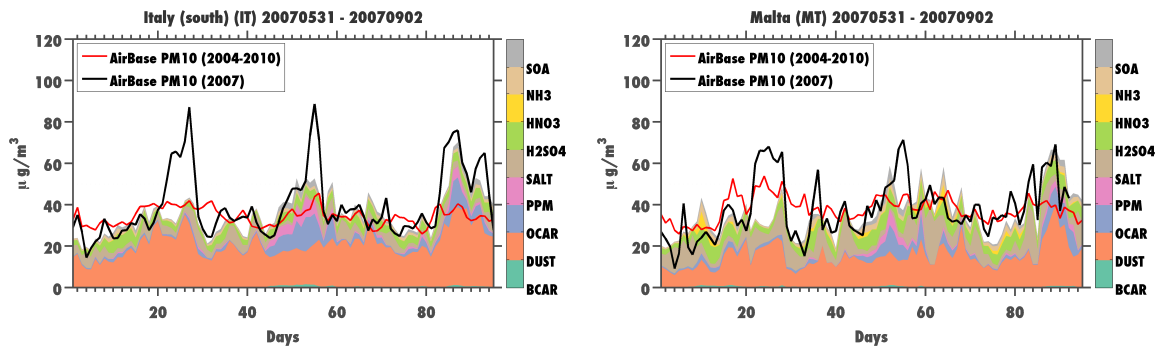


Figure 6.18 – Timeseries of measured  $PM_{10}$  surface concentrations in southern Italy and Malta and the corresponding contribution of each model species to the simulated  $PM_{10}$ .

The vertical structure of these dust plumes was captured by CALIPSO on June 20, 22 and 25. The corresponding orbits are illustrated in Figure 6.19 along with the column-integrated  $PM_{10}$  concentration for the CALIPSO overpass hour. According to the  $R'$  observations for these days, an aerosol layer is located between 30-40  $^\circ N$ , extending vertically from 3-6 km. In our simulation, an aerosol layer is located in the same area but the CHIMERE  $R'$  is underestimated and both the horizontal and vertical structure of these layers are not satisfyingly consistent with the observations. The underestimation of the modeled  $R'$  can be attributed to two main problems. As discussed above, in addition to insufficient dust emissions, the horizontal structure of the plume is too narrow and the orbit track only crosses the outer limits of the simulated aerosol layer.

On the vertical level, we observe an overestimation of the amount of aerosols transported towards higher altitudes as well as an overestimation of the vertical extent of the main plume. In order to better illustrate the observed inconsistencies, we present in Figure 6.20 two examples of  $R'$  profiles across the orbit track of June 22 and the corresponding concentration of each model species. According to CHIMERE, the dominant species in both cases is *DUST*. The main discrepancies can be attributed to the vertical diffusion parametrization in the model and to the chosen vertical resolution, which increases quasi-exponentially



with altitude. They also reflect the current limitations of vertical transport schemes in CTMs. In order to be able to reproduce aerosol plumes located in thin vertical layers it is important to use a higher vertical resolution and to adopt less diffusive schemes which preserve sharp concentration gradients and high peak values. However, the calculation of optical properties in OPTSIM may also induce some uncertainties in the comparisons since spherical particles are assumed (Chapitre 5).

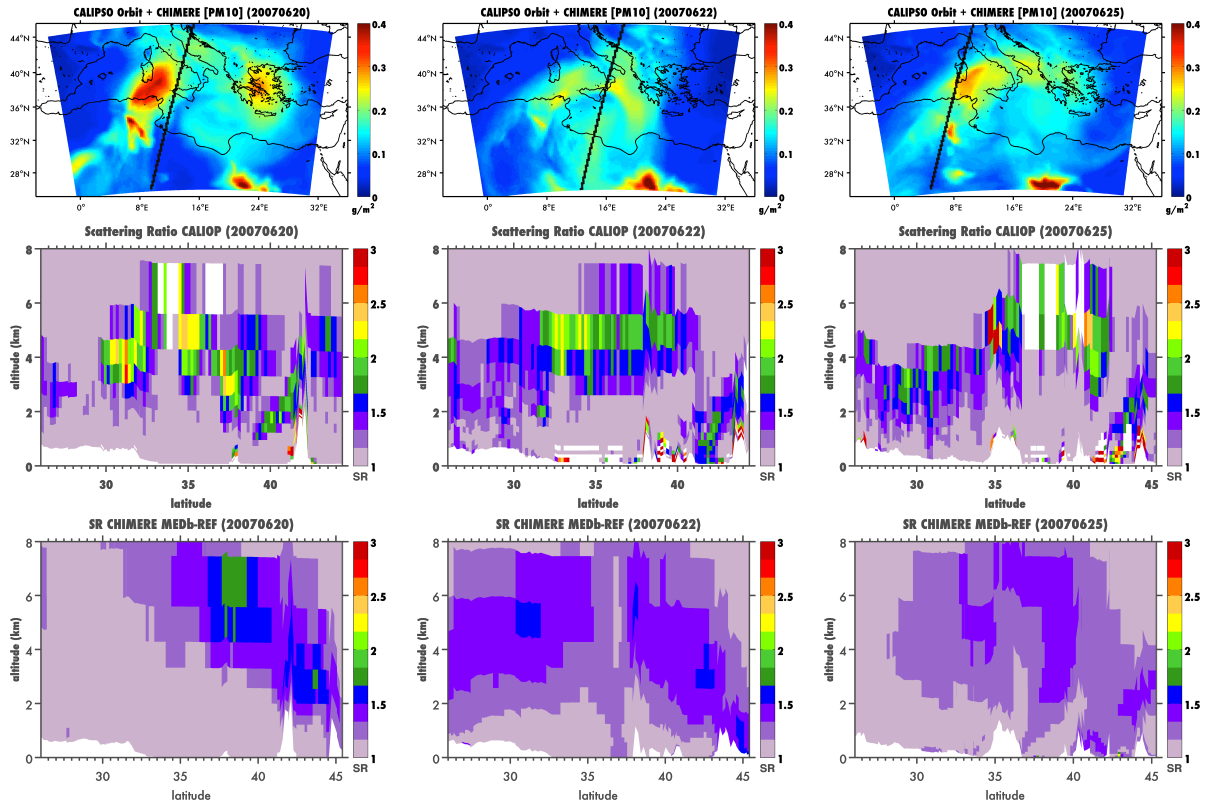


Figure 6.19 – CALIPSO night-time orbits for June 20, 22 and 25 along with the corresponding CHIMERE  $PM_{10}$  column-integrated concentration and the attenuated scattering ratio ( $R'$ ) by CALIOP and CHIMERE for these orbits. The initial cloud-contaminated CALIOP profiles are filtered out. The cloud-free data are averaged into the model's horizontal and vertical resolution for comparison to the simulated  $R'(z)$  profiles.



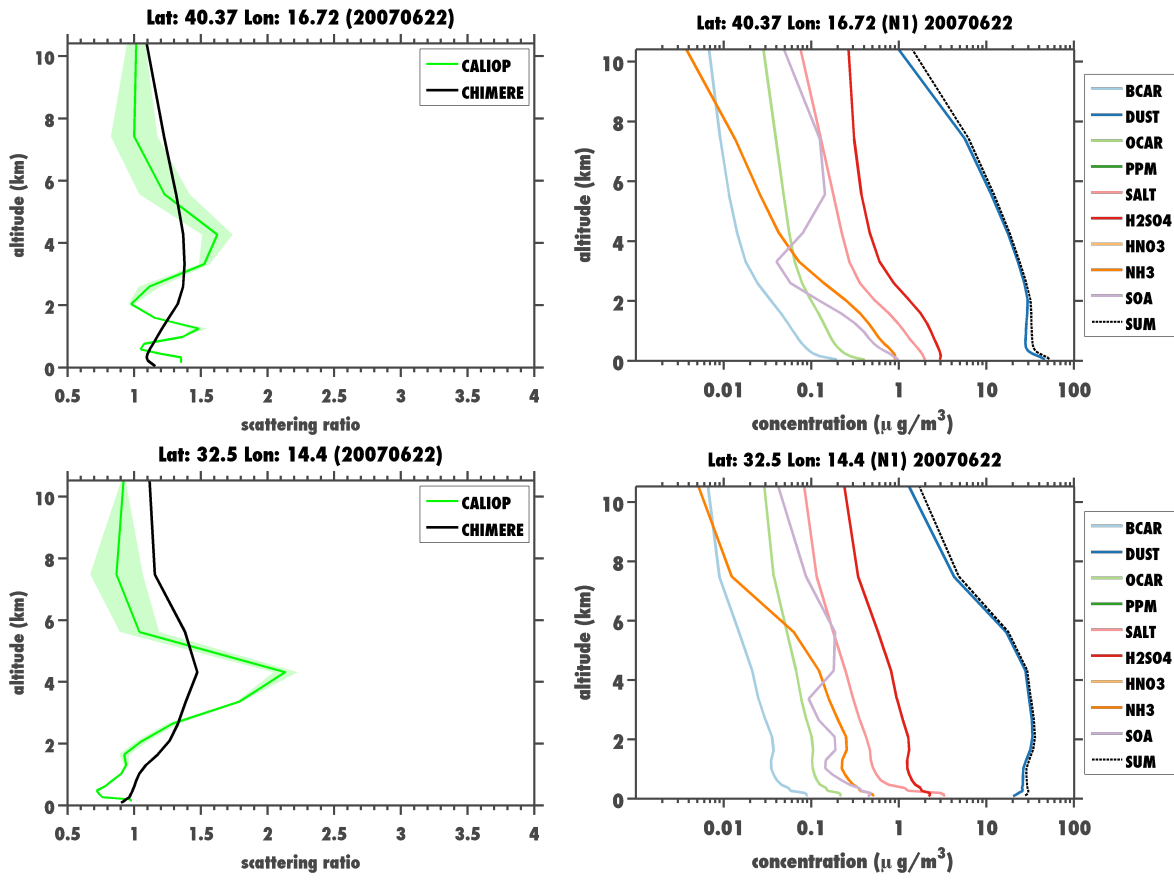


Figure 6.20 – Profiles of attenuated scattering ratio ( $R'$ ) across the night-time orbit track of June 22 and the corresponding modeled concentration (in  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) as a function of altitude.

### 6.4.3 The 19-31 July Fire Episode

During the last two weeks (19-31) of July 2007, several intense fire episodes were recorded by satellites and ground measurements in eastern Europe and the Balkan peninsula. Figure 6.21 illustrates the *OCAR* emissions and the resulting column-integrated *OCAR* concentration during this episode. The relative contribution of *OCAR* to  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  surface concentration levels is shown in Figure 6.22. We note that *OCAR* dominates the  $PM_{2.5}$  surface concentrations in the areas affected by these fires (50-80%) while it also contributes significantly to the  $PM_{10}$  budget (40-60%).

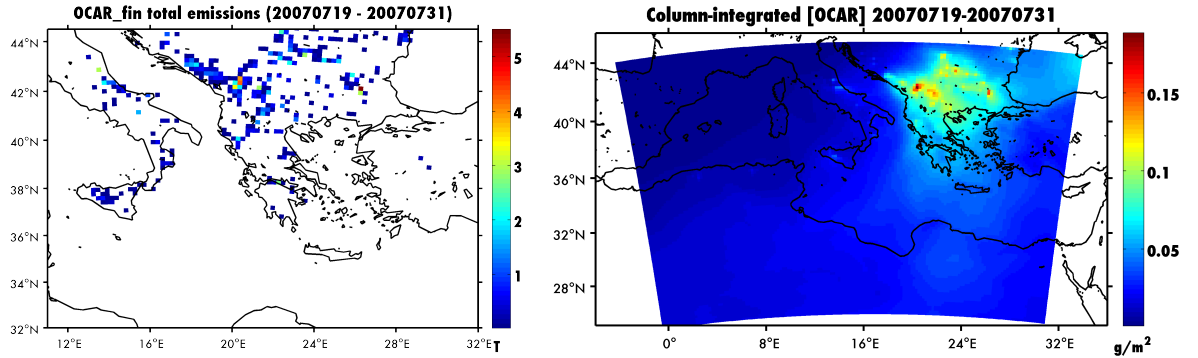


Figure 6.21 – *CHIMERE* total *OCAR* fire emissions (in t) for the time interval 19–31 July 2007 and the corresponding column-integrated *OCAR* concentration

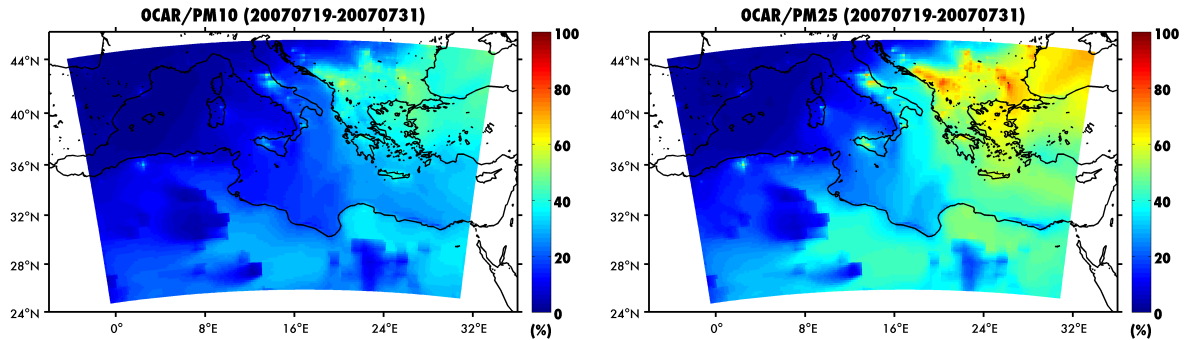


Figure 6.22 – Relative contribution of *OCAR* to  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  surface concentrations (in %) for the time interval 19-31 July 2007.

The location of these fires and the extent of the area affected is also shown in Figure 6.23 and Figure 6.24 based on observations of total AOD (at 550 nm) from MODIS and fine mode AOD (at 865 nm) from PARASOL respectively. The corresponding simulated AOD is presented in the same figures. The majority of the fires occurred in eastern Europe and the Balkans, where mean AOD hotspots of 1.24 (at 550 nm) were recorded, however Greece and the southern part of Italy were also affected.

The mean relative enhancement due to the fire emissions in the simulated AOD was found to be 110% on a regional scale. The simulated total AOD is generally in agreement with MODIS observations, but the contribution from fires is strongly underestimated near the Balkan peninsula, resulting in an average underestimation of the AOD of about 35%. The peak in the fire emissions and the corresponding column-integrated *OCAR* concen-

tration are located to the east of the observed peak (Figure 6.21). The underestimate of the fire emissions may be due to a wrong vegetation attribution or underestimate of the associated carbon content. This will need to be further examined.

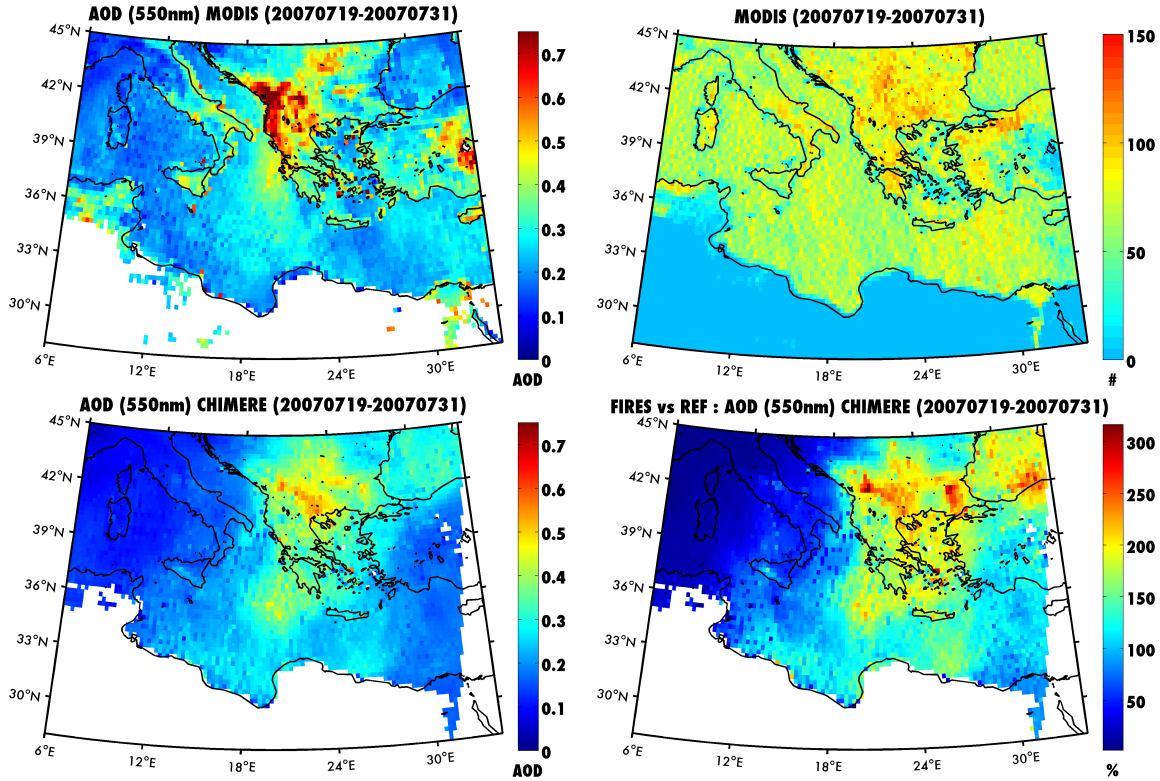


Figure 6.23 – Mean AOD (at 550 nm) from MODIS/AQUA and CHIMERE for the time interval 19-31 July 2007 and the corresponding relative contribution of fire emissions in the simulated AOD (in %). MODIS data are regrided to the resolution of the model (20 x 20 km).

PARASOL observations place the highest mean fine mode AOD values (exceeding 0.25) mostly in Eastern Europe. The difference between PARASOL and MODIS is due to different coverage, and a lack of PARASOL data in the Balkans region during those days (Figure 6.24) most probably because of cloud cover. The fire plume signatures on the north-eastern part of the region and over the Aegean sea can be identified in both the PARASOL observations and the corresponding simulated AOD but the modeled fine AOD is overestimated by a factor of 1.5 - 2. The differences between PARASOL and CHIMERE can be partly explained by some discrepancy in the aerosol cut-off radius. We remind that the cut-off radius used to calculate the fine mode AOD follows the AERONET methodology (Section 6.4.1) which differs from the definition used for PARASOL and MODIS satellite retrievals, and may lead to an underestimation of the corresponding products (Tanré et al., 2011). But it could also be due to an overestimate of fire emissions in this region, where we have seen that APIFLAME emissions are significantly higher than the emissions from the GFED inventory.

Ground-based observations of aerosol optical properties are available from 3 AERONET stations (Figure 6.25) in Bucharest, Lecce and Crete for the specific region and period studied. The Bucharest station which was the nearest station to the fires, recorded elevated

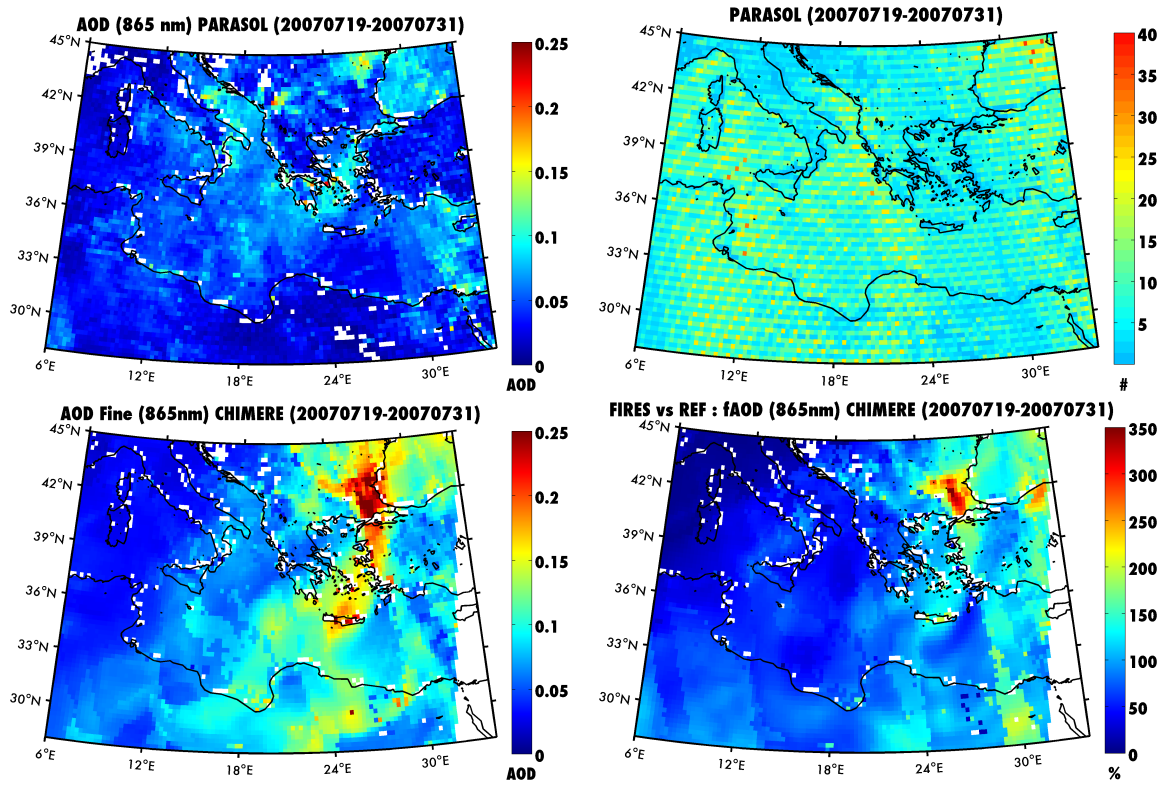


Figure 6.24 – Mean fine mode AOD (at 865 nm) from POLDER-3/PARASOL and CHIMERE for the time interval 19–31 July 2007 and the corresponding relative contribution of fire emissions in the simulated AOD (in %). PARASOL data are regridded to the resolution of the model (20 x 20 km).

AOD values during this period with highest AOD values reaching 0.25 and 0.32 (at 870 nm) on the 25 and 31 July respectively. The average AERONET AOD during this period was 0.18. The corresponding CHIMERE AOD (0.15) is in good agreement with AERONET measurements for the *FIRES* simulation. The relative increase in AOD due to fire emissions is found to be 69% with *OCAR* and *BCAR* contributing 30% and 8.4% to the average AOD.

The importance of long-range transport is depicted in the AOD timeseries at the Crete and Lecce sites. In the first case (Crete), elevated AOD values are observed during 24 July - 02 August with the highest AOD being recorded between 25-26 July (0.43-0.44). To outline the importance of this event we note that the average JJA AOD based on AERONET observations for the years 2004-2010 is 0.11. We attribute these values to particles transported from the north as a result of the Etesian winds (cf Section 6.3.1) blowing during this period. The corresponding air mass trajectories are shown in Figure 6.26. The addition of fire emissions in our simulations clearly improves the simulated AOD which is overall in good agreement with the observations. However the average AOD in the *FIRES* simulation is overestimated (0.18 against 0.14 for AERONET). The relative increase in the average AOD due to fire emissions is 132%. *OCAR* and *BCAR* contribute 41.7% and 7.5% to the total AOD respectively.

Finally, a sharp increase in AOD is also observed at the Lecce site during 22-28 July. The highest peak (0.42 on July 23) can be linked to coarse particles according to the

AERONET volume size distribution and the fine mode AOD, and is attributed to dust transported from Africa. The following weaker peaks (0.17-0.19) between 26-28 July are however associated with smaller particles (Figure 6.16) transported from the Balkan peninsula. The corresponding air mass trajectories are shown in Figure 6.26. The average AERONET AOD is 0.16 during this time interval. The corresponding modeled AOD in the *FIRES* simulation is 0.15 against 0.075 in the *REF* simulation. However, we note a slight temporal shift in the model peaks probably due to uncertainties in the temporality of fires in the emissions. The highest contribution to this increase originates from *OCAR* and *BCAR* with 35% and 13.8% of the total AOD being attributed to these species respectively. In the *REF* simulation their relative contribution is 3% and 2.6%.

Although the fire event is simulated above the sites during the right time period, these comparisons highlight the difficulty of getting correct temporal variability during the events. Since satellite measurements are instantaneous and often do not cover the full days of the events, errors in temporality could explain part of the large biases highlighted by the comparisons to MODIS and PARASOL, that are not confirmed by the AERONET comparisons.

Figure 6.27 presents time series of  $PM_{10}$  concentrations for the summer of 2007 for FYROM and Bulgaria. A burned area peak was observed between 23 and 31 July in both regions. For the FYROM case, AIRBASE stations recorded an average  $PM_{10}$  concentration of  $105.8 \mu g m^{-3}$ . To outline the severity of these fires, we note that this corresponds to a factor of 2 compared to the inter-annual concentration mean (July 2004-2010) also presented in the same figure. CHIMERE  $PM_{10}$  are consistent with these observations but the peak values are slightly overestimated resulting in an average concentration of  $113.3 \mu g m^{-3}$  (7% higher than the AIRBASE average). Half of the total 48 observed exceedances of the daily pollution threshold ( $50 \mu g m^{-3}$ ) are attributed to these fire episodes according to the model.

The corresponding  $PM_{10}$  levels in Bulgaria are lower with an average of  $52.7 \mu g m^{-3}$  during the event, which is higher than the inter-annual average by a factor of 1.54. We note a good agreement between CHIMERE and AIRBASE but the average  $PM_{10}$  concentration is higher ( $72.9 \mu g m^{-3}$ , 38% higher than observations) due an overestimation of the observed peak values. According to CHIMERE, 55.6% of the 9 observed exceedances can be explained by the fire episodes.

The significant impact of those fire events on a larger regional scale, can be inferred from the high levels of  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  concentrations recorded at the same time in Greece. In particular, AIRBASE stations both in northern and southern Greece (around Thessaloniki and Athens respectively) recorded a sharp increase in  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  surface concentrations during 23-28 July. The corresponding air-mass trajectories reveal that these extreme values can be attributed to particles transported southward from the fire sources. In fact, we note a peak in fire emissions (*OCAR*, *BCAR*) in the north while at the same time fire emissions around these stations in Greece are close to zero (Figure 6.28).

Stations around Thessaloniki recorded an average  $PM_{10}$  concentration of  $80 \mu g m^{-3}$ , significantly above the average concentration of 2004-2010 ( $37.9 \mu g m^{-3}$ ). The corresponding CHIMERE  $PM_{10}$  levels are in very good agreement with AIRBASE but the observed peak is overestimated leading to an average concentration of  $105 \mu g m^{-3}$ . Measurements of  $PM_{2.5}$  are not available. The average measured  $PM_{10}$  in Athens during this period was  $71.5 \mu g m^{-3}$ , higher than the average concentration of 2004-2010 by a factor of 1.8. CHIMERE is reproducing well the observed peak in both  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$ . The average modeled  $PM_{10}$  is  $70.8 \mu g m^{-3}$  while according to the model, 40% of the total observed (25) summer exceedances can be attributed to fires. The corresponding measured  $PM_{2.5}$  concentration



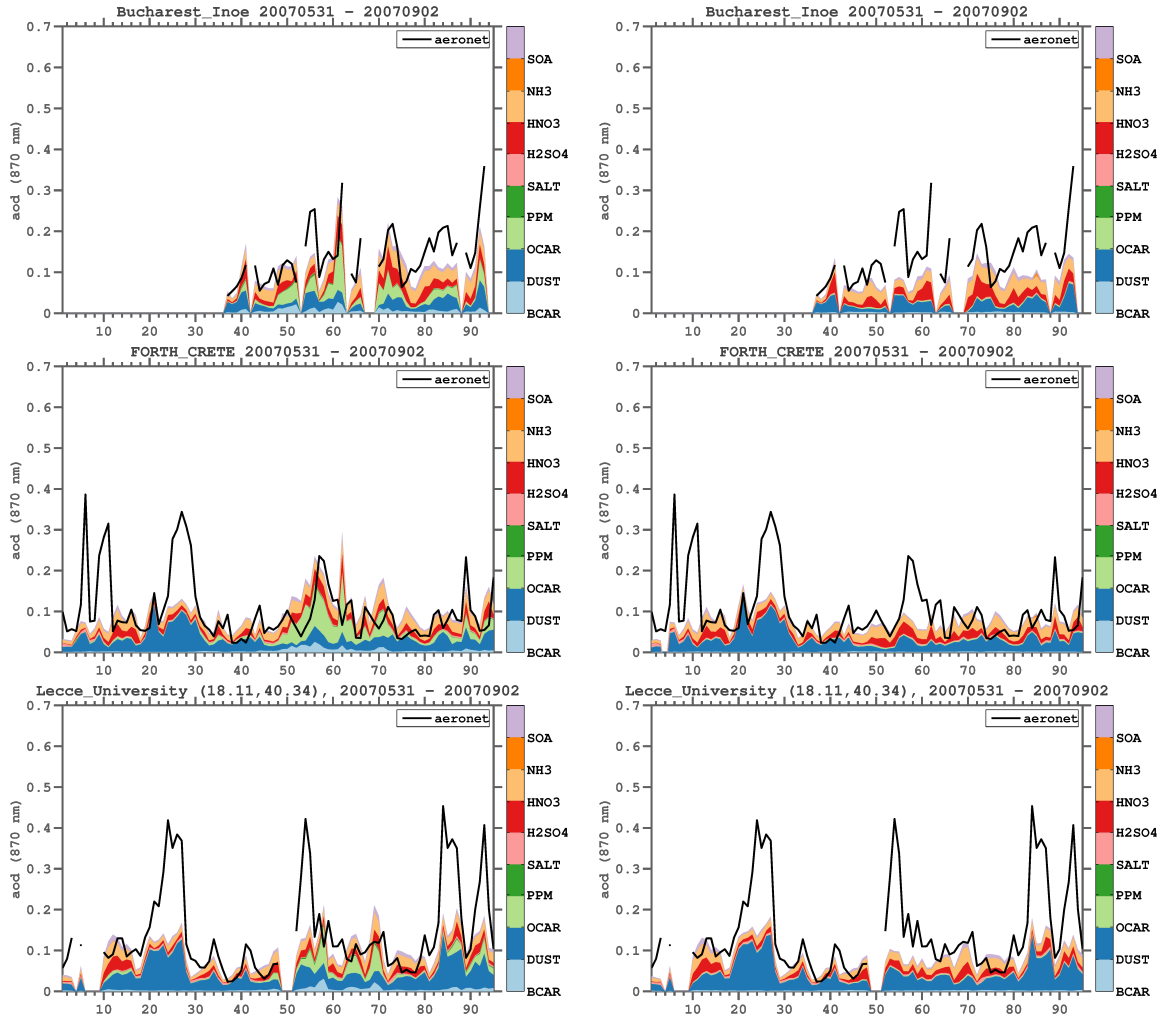


Figure 6.25 – Timeseries of AOD 870 nm at three AERONET stations affected by the fire episodes in Eastern Europe and the corresponding contribution of each model species for the two simulations (left pannels : with fires, right pannels : without fires).

is  $51.3 \mu\text{g m}^{-3}$  (against  $50.8 \mu\text{g m}^{-3}$  for CHIMERE) indicating that fine mode particles dominate the associated aerosol loading.

During this period, the fire plumes were captured by CALIOP primarily on July 19, 23 and 26. The corresponding CHIMERE  $\text{PM}_{10}$  column-integrated concentration and the Attenuated Scattering Ratio by CALIOP and CHIMERE for both simulations (REF, REF+FIRES) are illustrated in Figure 6.29. The CALIOP  $R'$  observations show an aerosol layer around  $40\text{--}45^\circ\text{N}$ , extending vertically up to  $4 \text{ km}$ . The  $R'$  for the southern part of the orbit is attributed to dust, which is missed in the simulation. CHIMERE reproduces the main fire signatures in the simulated  $R'$  but its magnitude is underestimated by a factor of 1.5-2. The height of the fire plumes is generally consistent with the observations although slightly overestimated, exceeding  $4 \text{ km}$  altitude. This is more pronounced on the first day of the episode. As discussed before (cf Section 6.4.2) this unrealistic representation of the layer thickness can be primarily attributed to the coarse vertical resolution of the model. The identified discrepancies are also illustrated in Figure 6.30, presenting three examples of  $R'$  profiles and the corresponding concentration of each model species. We observe that

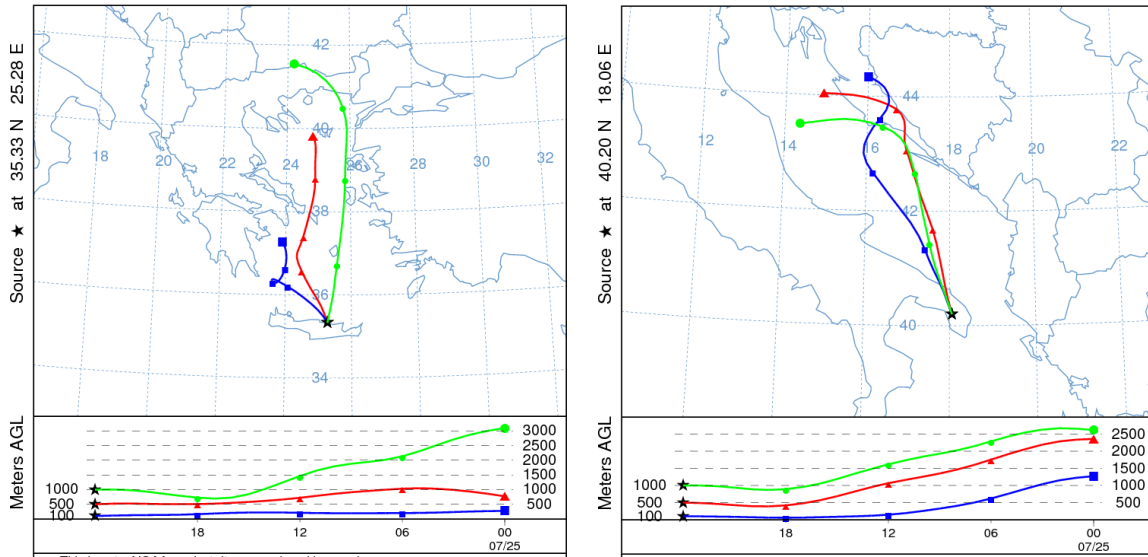


Figure 6.26 – Backward air mass trajectories ending on July 26 for the Crete and Lecce sites.

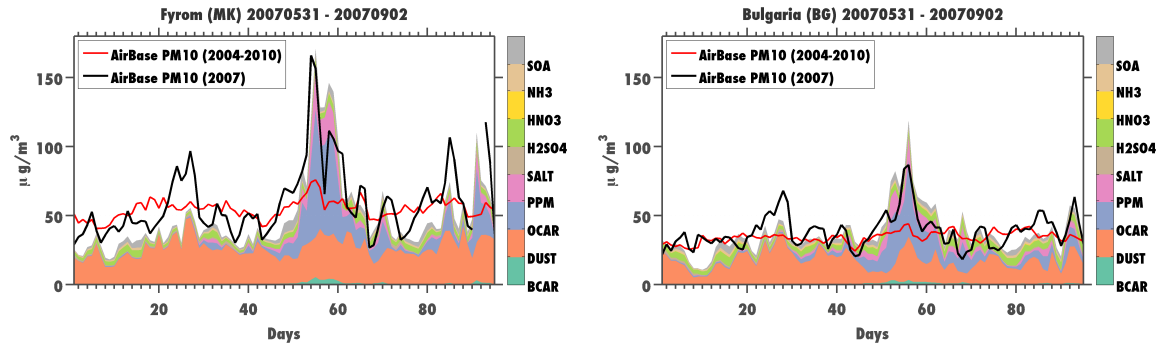


Figure 6.27 – Timeseries of measured  $PM_{10}$  surface concentrations in FYROM and Bulgaria for the summer of 2007 and the corresponding contribution of each model species to the simulated  $PM_{10}$ .

the increase to the simulated lidar signal in the *FIRES* simulation is attributed mainly to *OCAR* and *PPM*.

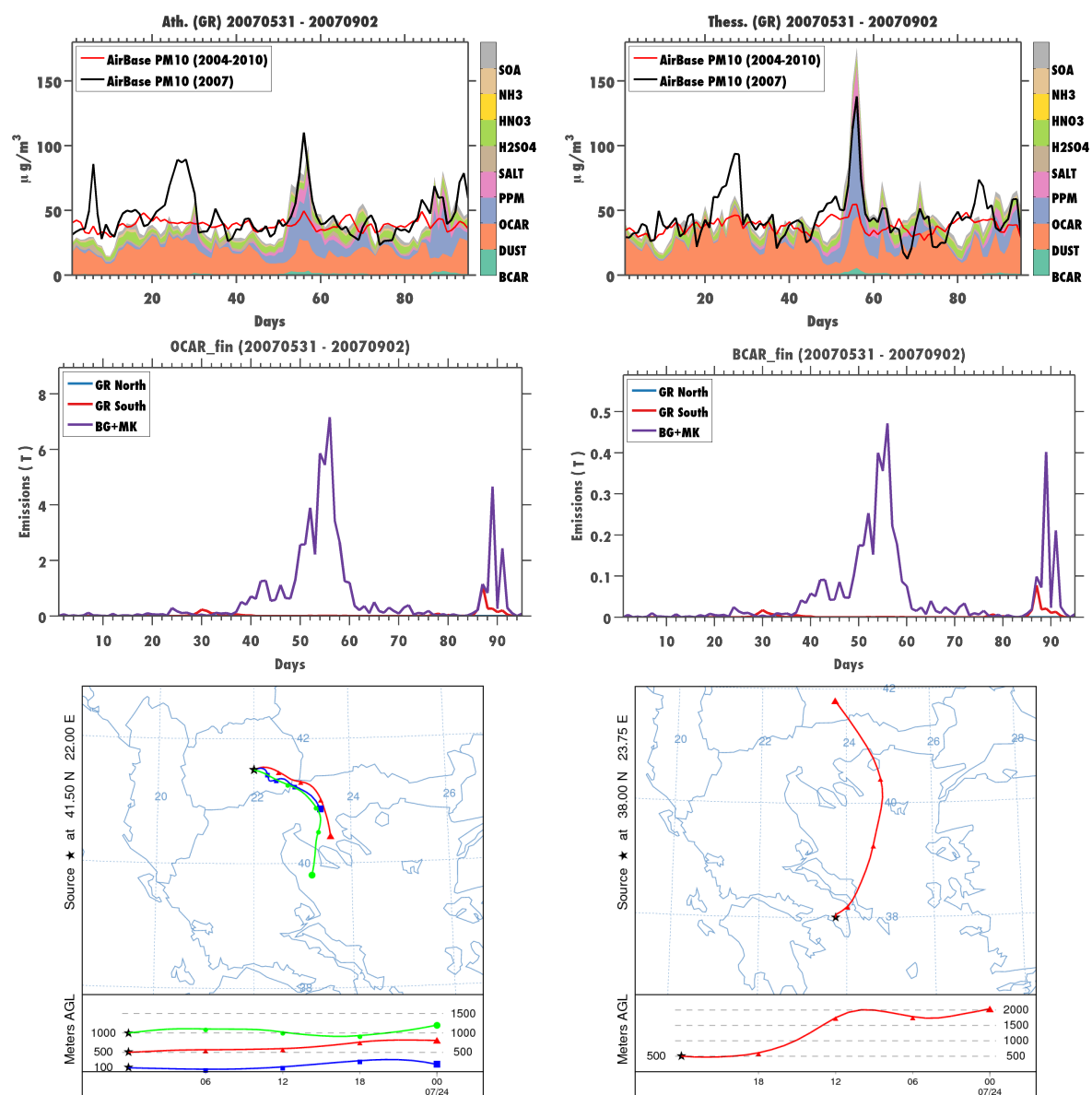


Figure 6.28 – Timeseries of measured PM<sub>10</sub> surface concentrations in southern and northern Greece for the summer of 2007 and the corresponding contribution of each model species to the simulated PM<sub>10</sub>.



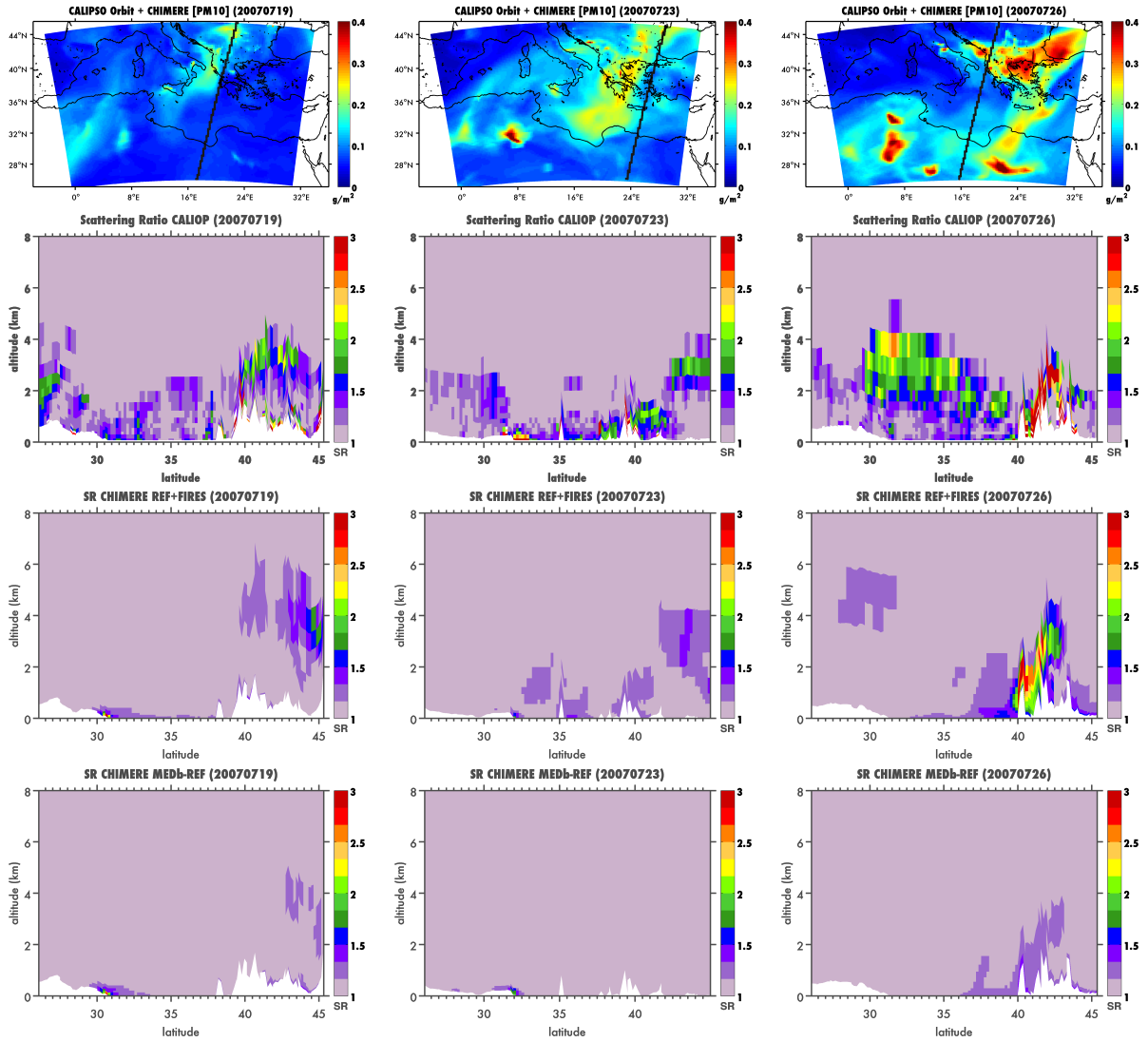


Figure 6.29 – *CALIPSO* night-time orbits for July 19, 23 and 26 along with the corresponding *CHIMERE* PM<sub>10</sub> column-integrated concentration and the Attenuated Scattering Ratio by *CALIOP* and *CHIMERE* (REF, REF+FIRES) for these orbits. The initial cloud-contaminated *CALIOP* profiles are filtered out. The cloud-free data are averaged into the model's horizontal and vertical resolutions for comparison to the simulated  $R'$  profiles.

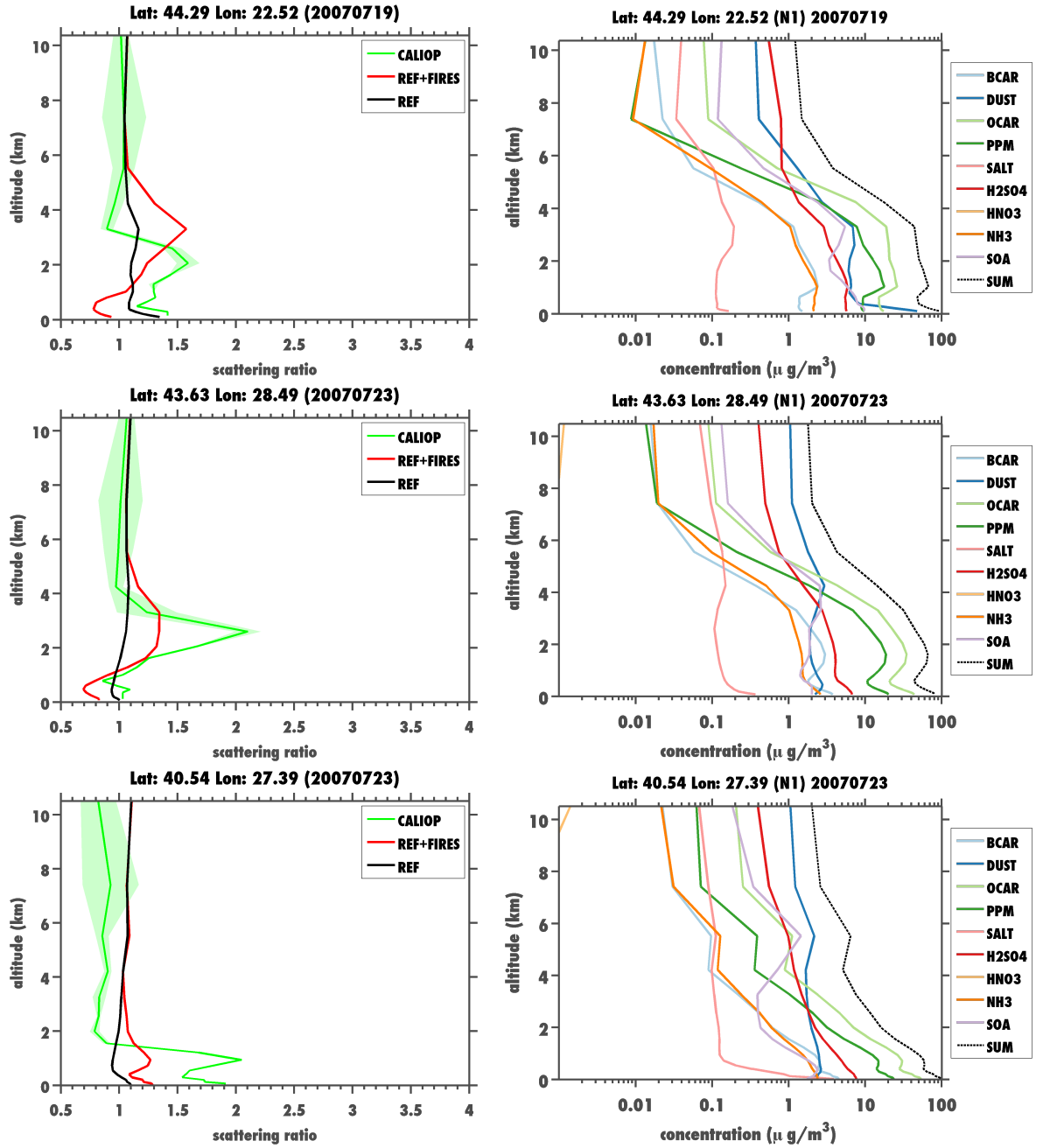


Figure 6.30 – Profiles of attenuated scattering ratio ( $R'$ ) across the night-time orbit track of June 22 and the corresponding modeled concentration (in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) as a function of altitude.

#### 6.4.4 The 24-31 August Fire and Dust Episode

During the last week of August of 2007, extreme meteorological conditions (consecutive heat waves and severe drought) coincided with severe fire episodes (Turquety et al., 2009; Liu et al., 2009; Boschetti et al., 2008) in southern Greece (Peloponnese). The total area burned (from MODIS) for the time interval 24-31 August 2007 is shown in Figure 6.5 (cf Section 6.3.2). The maximum values are observed in Peloponnese where the wildfires originated. However, we also notice the occurrence of wildfire episodes in northern Algeria, the Balkans and in Italy over the same period. The relative contribution of *OCAR* to  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  surface concentrations as modeled by CHIMERE for this period is shown in Figure 6.31. We observe a significant contribution of *OCAR* to both  $PM_{2.5}$  (50-90%) and  $PM_{10}$  (40-60%) surface concentrations in the source areas as well as far from the sources, over the African coast which indicates the transport pathways of the resulting fire plumes.

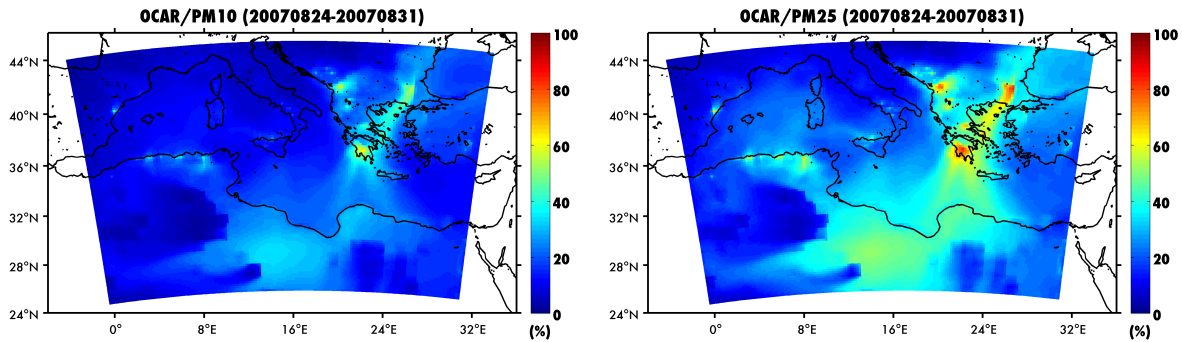


Figure 6.31 – Relative contribution of *OCAR* to  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  surface concentrations (in %) for the time interval 24-31 August 2007.

According to MODIS and PARASOL AOD observations, the main fire episode started on August 24 in Peloponnese. The resulting smoke plumes, fanned by north-easterly winds, crossed the south Ionian Sea and were transported initially over-the-sea toward the northern part of the African continent. On August 27, the direction of the prevailing winds changed and the fire plumes followed a more direct southern direction. The fire plume was then transported over the north African continent and recirculated towards the North-East. The corresponding  $\alpha$  on the south-western part of Italy indicates a mixing of the fire particles with coarser aerosols (most probably dust).

The daily total AOD from MODIS (at 550 nm) and the corresponding CHIMERE AOD for four selected days (24, 25, 27 and 30 Aug.) are shown in Figure 6.32. The corresponding daily fine AOD from PARASOL and CHIMERE (at 865 nm) shown in Figure 6.33, provides a clear idea of the transport pathways across the African coast. Extreme daily AOD ( $> 1$  for the total AOD at 550 nm and  $> 0.5$  for the fine mode AOD at 865 nm) values were recorded by both sensors. The simulated AOD is generally consistent with the observations in terms of localization and the transport is relatively well reproduced, although we notice a temporal shift in the fire emissions, in particular the first peak (24 August). The extreme levels of AOD that were observed in the fire plumes are not reflected in the FIRES simulation indicating that the emissions are underestimated. On August 27, the simulated CHIMERE AOD near the Peloponnese (the source area) is consistent with the MODIS (total AOD) and PARASOL (fine mode AOD) with no significant bias in general. The maximum AOD values are slightly overestimated in CHIMERE with the total AOD from MODIS near the sources being 1.65 against 1.7 from CHIMERE and the

fine mode AOD from PARASOL being 0.42 while in CHIMERE reached 0.54. However, the fire plume seems to be rapidly diluted which results in an underestimation of the observed AOD values by a factor of 2.5 - 3 far from the sources. During this episode, the maximum relative contribution of *OCAR* to the  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  budget over the sources in Greece reached 65% and 85% respectively. On average and over the entire region around the sources, *OCAR* concentrations represent 26% and 29% of the  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  budget.

On August 30, the strong plume transported over the Western part of the domain is strongly underestimated in the simulations. Large fires burned in Northern Africa at the end of August, which seem to be highly underestimated in the emissions. The model simulations also suggest a mixing of fire and dust plumes. The maximum contribution of *OCAR* to the  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  budget near the sources on August 30 reached 49% and 76% respectively with a mean contribution of 15% and 28% over the entire northern Africa coast. *DUST* peak concentrations represented 75% of  $PM_{10}$  and 67% of  $PM_{2.5}$  while in average the relative contribution was 45% and 39% respectively.

According to AERONET Level 1.5 measurements in Blida, an AOD peak (0.75) was recorded on August 27 with the fine mode contributing 87% to this value. The corresponding CHIMERE total AOD is 0.34 with a 77% contribution of the fine mode. We note that level 2 data are not available in Blida after August 20 (Figure 6.13).

AOD peaks were also recorded in Crete (0.23 at 870 nm on Aug. 27) and Lecce (0.41 at 870 nm on Aug. 31) AERONET stations (cf Figure 6.25). In both cases, the fine mode contribution to these values is significant (72% and 82%, respectively). For the Crete case, CHIMERE is reproducing the observed peak but underestimates the AOD value (0.17, 26% underestimate). In Lecce, the addition of fire emissions results in a small increase in the simulated AOD (0.18 against 0.13 without fire emissions), but the observed peak remains heavily underestimated by the model (56% too low).

AIRBASE measurements in stations across southern Italy ( $< 40^\circ N$ ) and Malta show elevated  $PM_{10}$  surface concentration levels during these episodes (Figure 6.18). The average  $PM_{10}$  surface concentration is  $55.3 \mu g m^{-3}$  and  $61.7 \mu g m^{-3}$ , respectively. In both cases, CHIMERE is consistent with the measurements. Compared to stations in Italy, the average  $PM_{10}$  concentration is underestimated while compared to stations in Malta, the model slightly overestimates the duration of the episode which results to an overestimated average concentration of  $61.3 \mu g m^{-3}$  (against  $55.3 \mu g m^{-3}$  for AIRBASE, about 10% lower).

During this event, CALIPSO overpassed the aerosol plumes on August 25, 27 and 29. These orbits are shown in Figure 6.34 along with the corresponding CHIMERE  $PM_{10}$  column-integrated concentration and attenuated scattering ratio. On August 25, CALIOP  $R'$  captures an aerosol layer between  $35-45^\circ N$  which according to the modeled  $PM_{10}$  originates mostly from the fires in the Balkans. It extends vertically from 1.5 (far from the sources) to almost 6 km (near the sources). On August 27, we observe two separate aerosol plumes from the fires in Greece and the Balkans respectively. Both aerosol layers do not exceed 4 km altitude. On August 29, the transport of the fire plumes from the Greek fires is observed in the  $R'$  observations. Extending vertically from the ground up to 3.7 km altitude, it reaches the African coast where a second peak in  $R'$  is observed, due to the presence of dust aerosols as shown in the  $R'$  profiles in Figure 6.35. The main signatures of these plumes can be identified in the simulated  $R'$ . Again, we note a general tendency of the model to underestimate the absolute value of  $R'$  which can be due to insufficient emissions and/or quick dilution of the resulting aerosol layers. The altitude of the simulated fire plumes is consistent with the observations but these results are confronted with the current model limitations in the parameterizations of the vertical transport (cf Section 6.4.2). We also notice on these example profiles that the altitude or magnitude of

the peaks at about 3-4 *km* are underestimated, which could be partly due to the injection height at emission. We currently consider emissions mixed in the boundary layer, but some fraction for the most intense fires could be injected higher, favoring long-range transport.

The CALIPSO orbit for August 30, is shown in [Figure 6.36](#) along the corresponding CHIMERE PM<sub>10</sub> column-integrated concentrations for both simulations (*FIRES* and *REF*). We note that the contribution of fires to PM<sub>10</sub> in Northern Africa is significant over the fire sources with a maximum relative difference of 173% while on average, around the northern Africa coast, the mean relative difference between the two simulations is 13%. The mixing of fire and dust plumes predicted by the model can be seen in [Figure 6.37](#) which illustrates the corresponding  $R'$  from CALIPSO and CHIMERE (for both simulations). According to CALIOP, the main aerosol layer is located between 35-45 °N at an altitude of 3.5 - 6 *km*. The simulated  $R'$  indicates that CHIMERE predicts fairly well the altitude of this aerosol plume however its absolute value is heavily underestimated by a factor of 2.5 - 4. This behavior can be partly explained by the low increase in  $R'$  in the *FIRES* simulation which reaches 19.3% at its peak. However it may also be attributed to insufficient dust emissions.

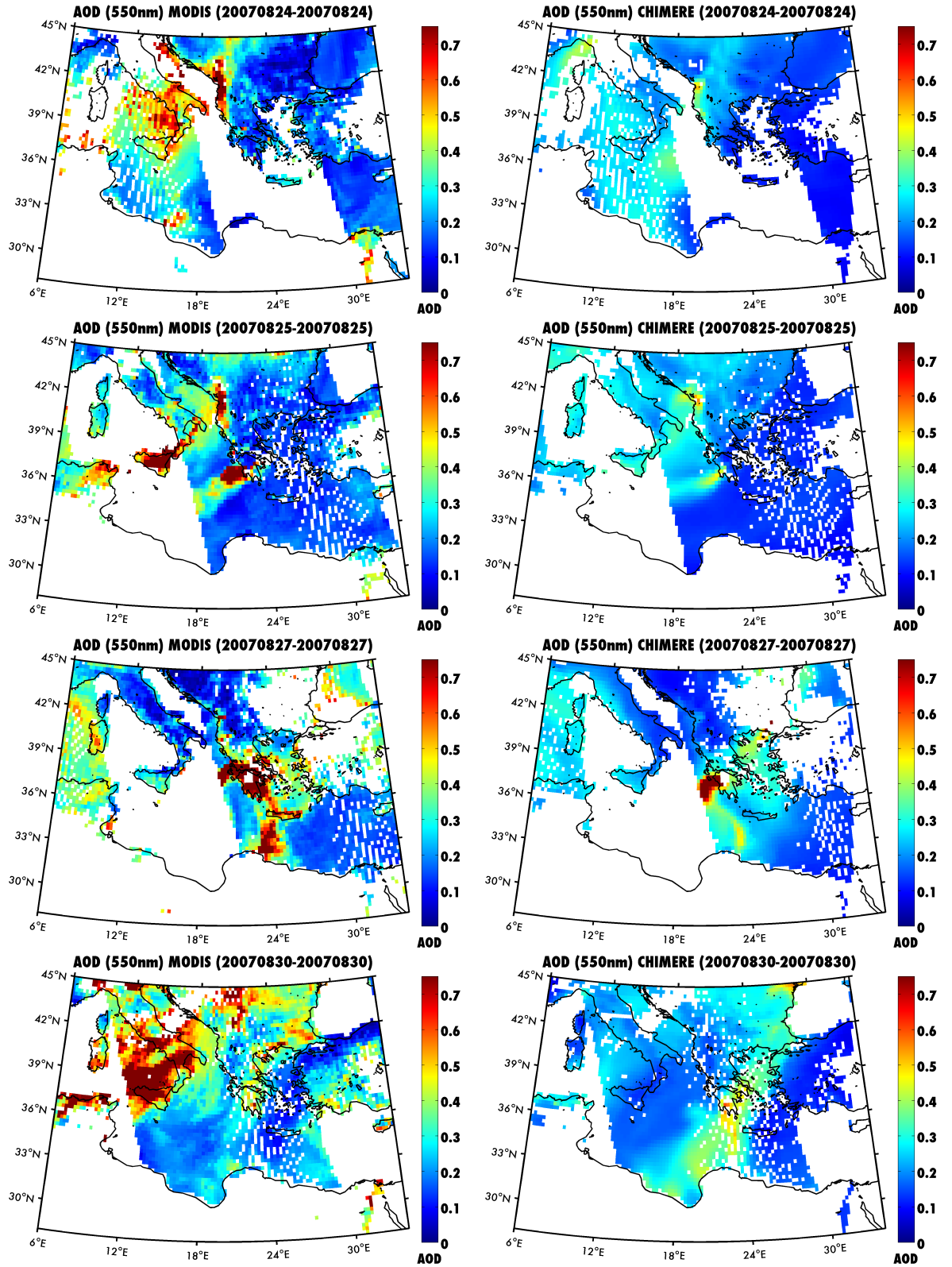


Figure 6.32 – Total AOD (at 550 nm) from MODIS/AQUA and the corresponding CHIMERE AOD for the time interval 24-29 August 2007. MODIS data are regridded to the resolution of the model (20 x 20 km).



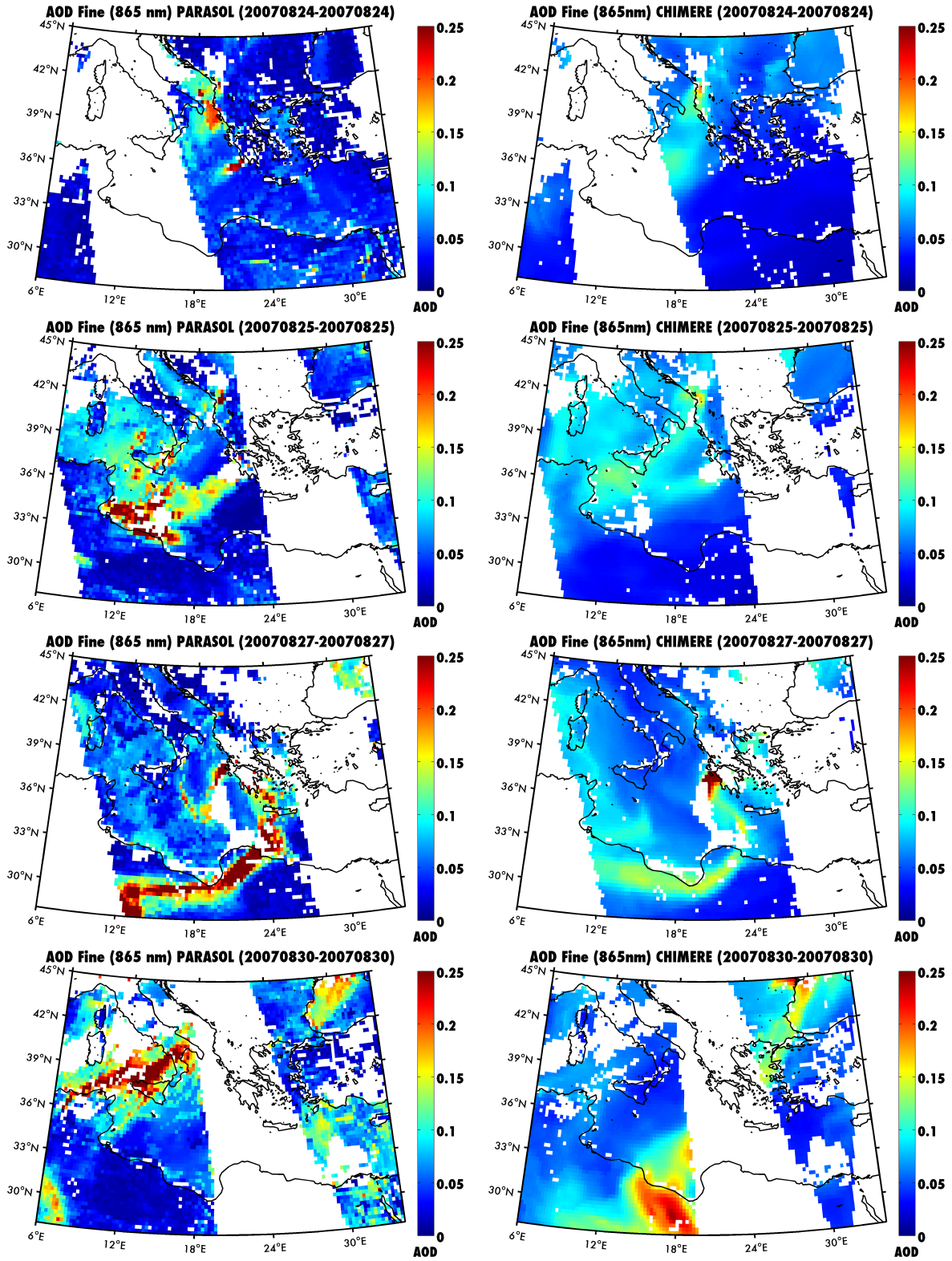


Figure 6.33 – Fine mode AOD (at 865 nm) from PARASOL and the corresponding CHIMERE AOD for the time interval 24-29 August 2007. PARASOL data are regridded to the resolution of the model (20 x 20 km).



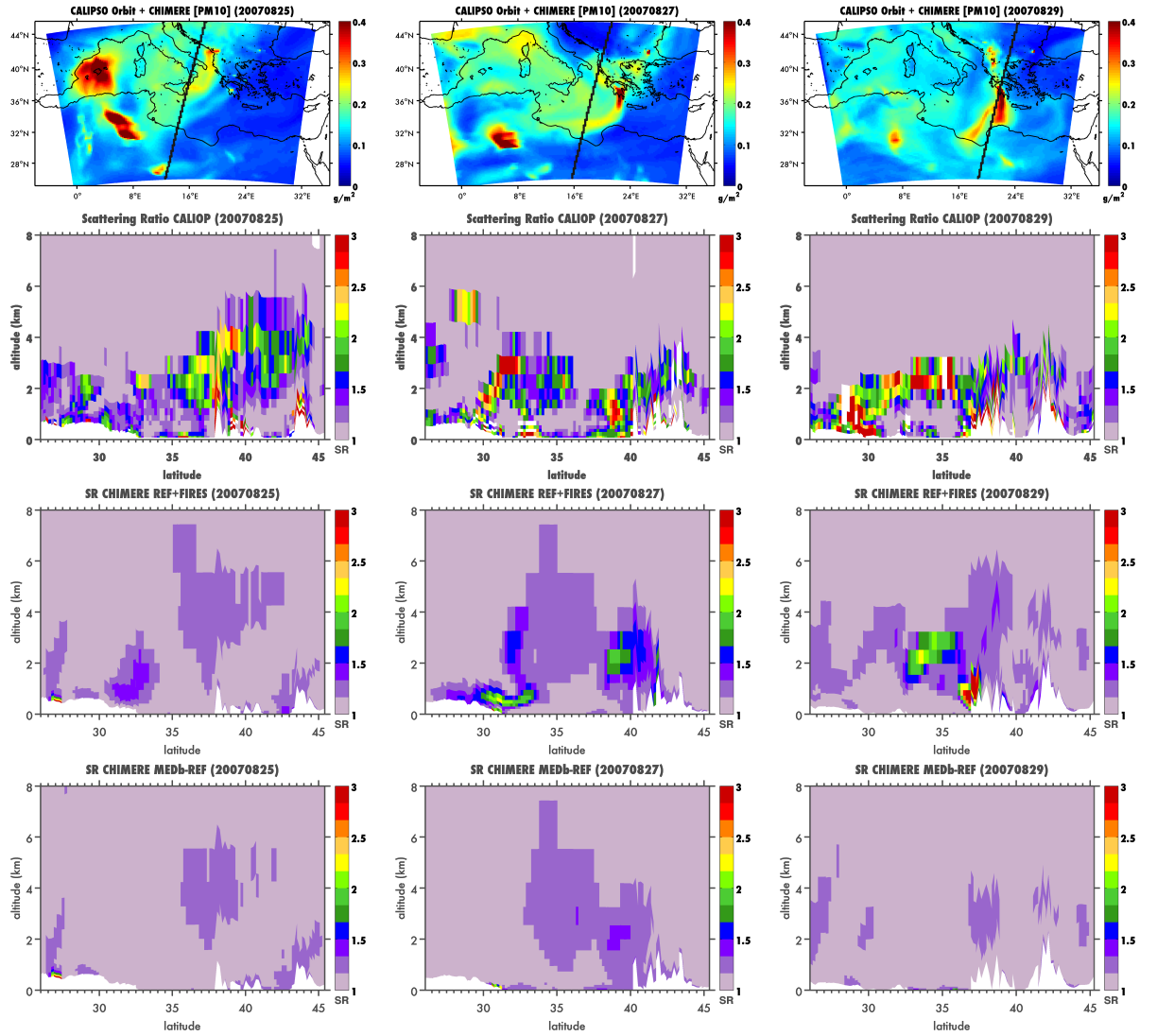


Figure 6.34 – *CALIPSO* night-time orbits for August 25, 27 and 29 along with the corresponding *CHIMERE*  $PM_{10}$  column-integrated concentration and the Attenuated Scattering Ratio by *CALIOP* and *CHIMERE* (REF, REF+FIRES) for these orbits. The initial cloud-contaminated *CALIOP* profiles are filtered out. The cloud-free data are averaged into the model's horizontal and vertical resolutions for comparison to the simulated  $R'$  profiles.

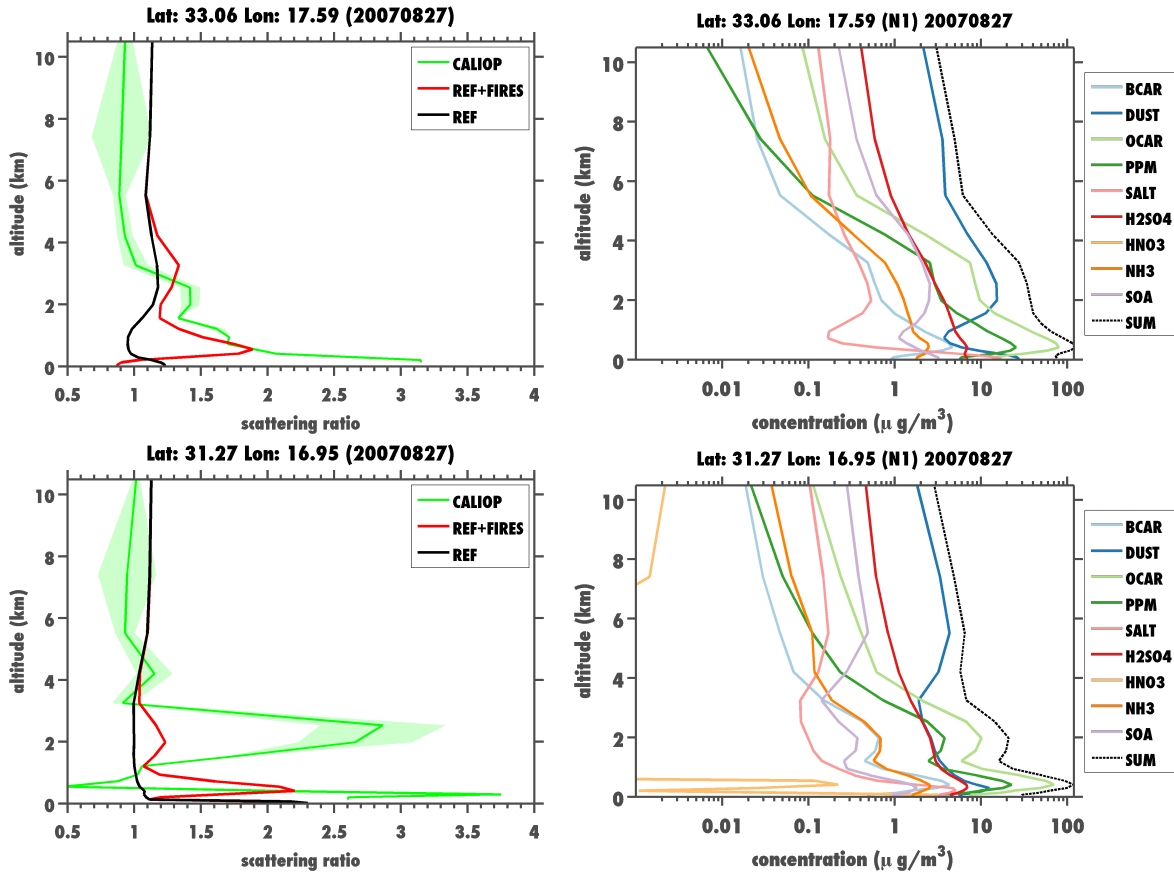


Figure 6.35 – Profiles of attenuated scattering ratio ( $R'$ ) across the night-time orbit track of August 27 and the corresponding modeled concentration (in  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) as a function of altitude.

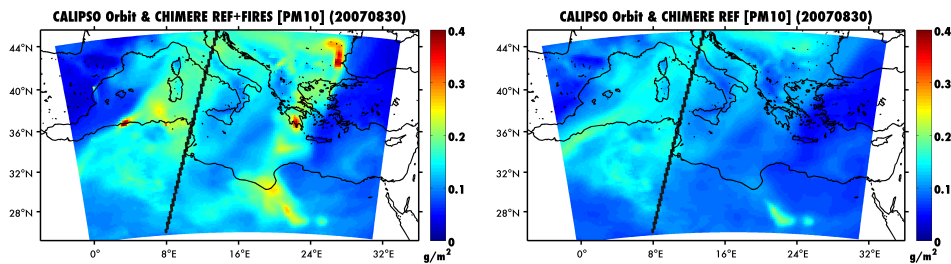


Figure 6.36 – CALIPSO night-time orbits for August 30 along with the corresponding CHIMERE  $\text{PM}_{10}$  column-integrated concentration for both simulations (FIRES and REF).

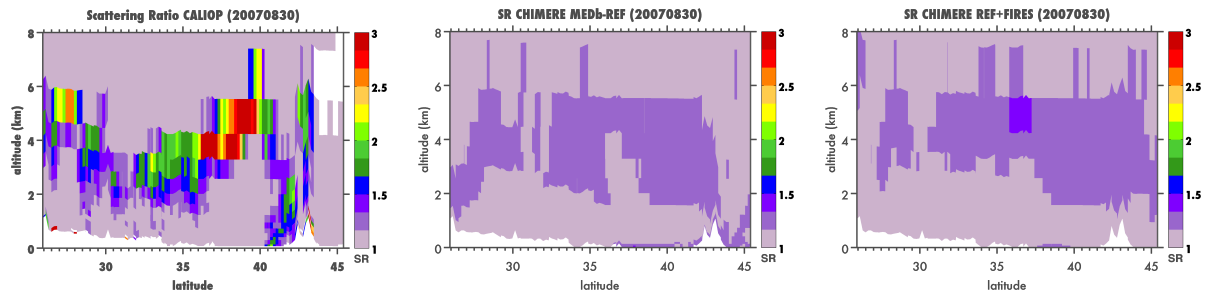


Figure 6.37 – Attenuated Scattering Ratio by CALIOP and CHIMERE (REF, REF+FIRES) for the orbit of August 30 shown in Figure 6.36. The initial cloud-contaminated CALIOP profiles are filtered out. The cloud-free data are averaged into the model’s horizontal and vertical resolutions for comparison to the simulated  $R'$  profiles.

### 6.4.5 Relative influences on the regional aerosol load

Three large subregions (west, central and east Euro-Mediterranean) are defined in order to assess the  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  surface concentration levels and the relative contribution of each species in the domain (MEDb). The domain MEDb and the subregions are presented in Figure 6.38 along with the AIRBASE stations used for validation purposes. We note that for this analysis, all types of stations (rural, background, suburban, urban) are considered.

The average observed (AIRBASE)  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  concentrations during the summer of 2007, along with the contribution of each species from CHIMERE are shown in Figure 6.39 for each subregion. The temporal variability of both  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$ , as well as the average concentration on a regional level, are in general correctly simulated by CHIMERE in all subregions. Moreover, we note that most of the peaks are correctly reproduced with the exception of the two dust episodes that reached the eastern part of the domain which are significantly underestimated.

The model shows a general tendency to underestimate the  $PM_{10}$  surface concentrations in the western Euro-Mediterranean, with a mean relative bias -15% ( $-4.6 \mu g m^{-3}$ ) while  $PM_{2.5}$  are overestimated by 15% ( $1.7 \mu g m^{-3}$ ). This can be attributed to an overestimation of the mean relative contribution of *DUST* which represents 60% of the total  $PM_{2.5}$  in the model.

In the central Euro-Mediterranean, both  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  are slightly overestimated by 17% ( $4.2 \mu g m^{-3}$ ) and 16% ( $2 \mu g m^{-3}$ ) respectively. The average relative increase in the model bias from the addition of fires is 7% ( $1.9 \mu g m^{-3}$ ).

The impact of the fire episodes on a regional level is mostly evident in east Euro-Mediterranean. In this sub-region, both  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  are underestimated by -8% ( $3.6 \mu g m^{-3}$ ) and -31% ( $-10.2 \mu g m^{-3}$ ) respectively. However, the corresponding bias in our *REF* simulation are -30% and -50% respectively. We observe therefore, that fires are a significant pollution source, especially for areas close to the sources.

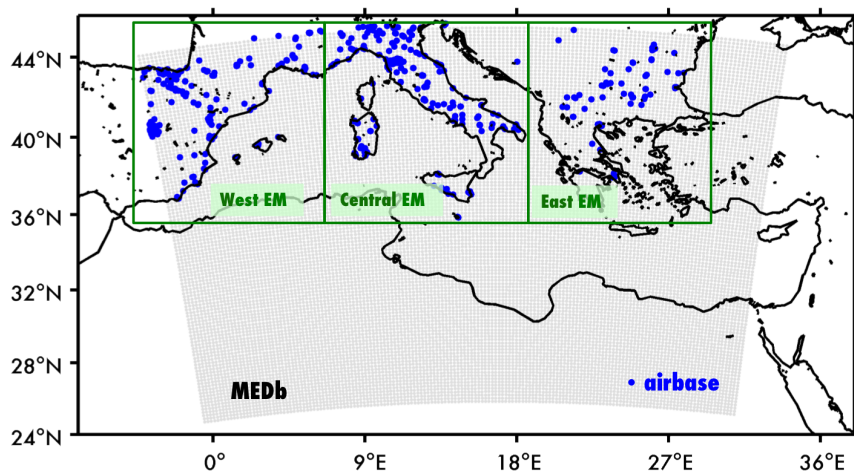


Figure 6.38 – Domain of simulation and AIRBASE stations (all types)

In order to quantify the relative impact of fire emissions to the exceedances of the daily air-quality threshold ( $50 \mu g m^{-3}$ ), the number of exceedances predicted by the model are compared to the exceedances observed by AIRBASE. The results per region are presented in Figure 6.41 for July - August 2007 when the fire episodes occurred. We note a good agreement between CHIMERE and AIRBASE when both dust and fires are accounted

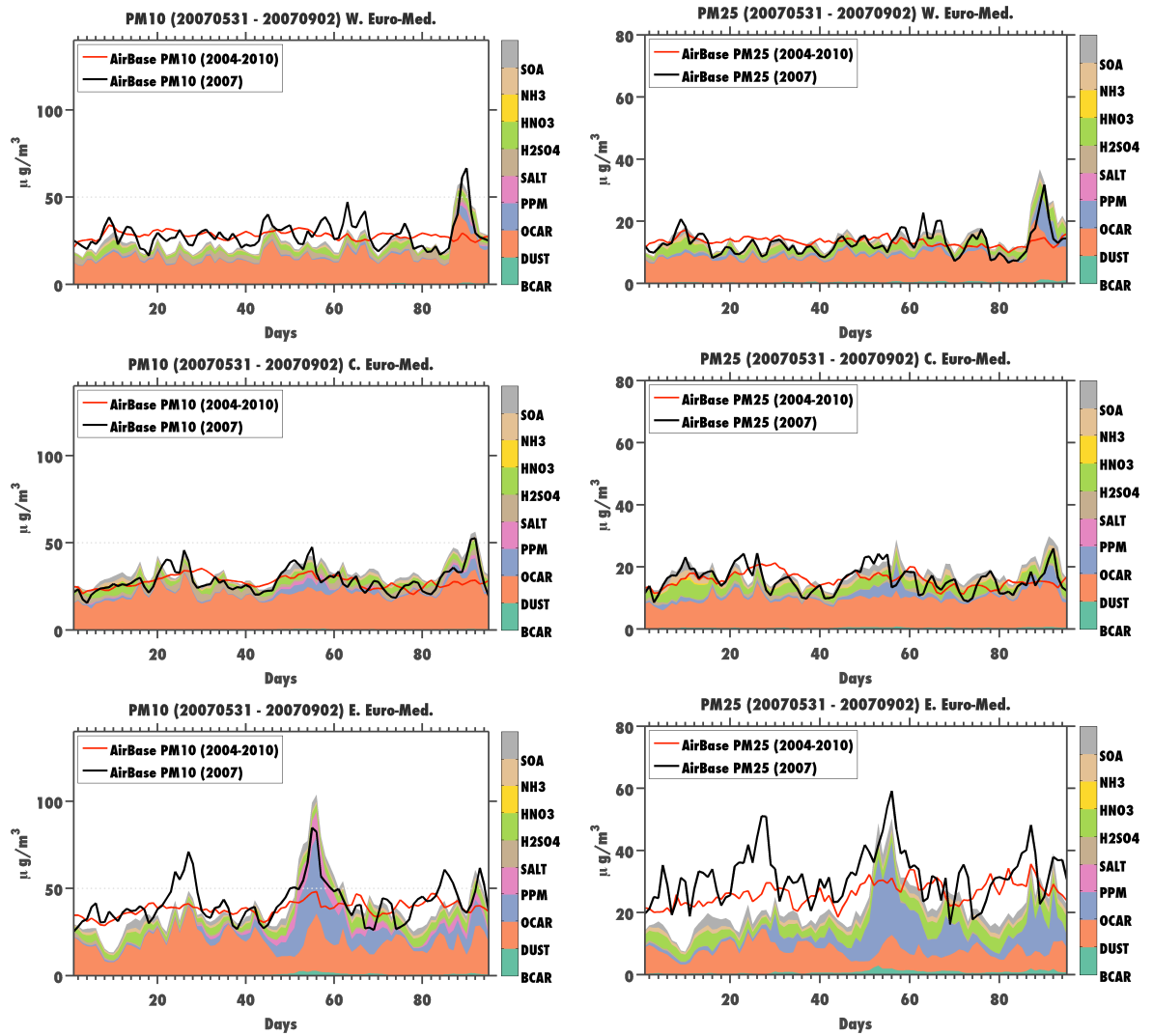


Figure 6.39 – Timeseries of PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> surface concentrations for west, central and east Euro-Mediterranean and the corresponding contribution of each model species.

for. However the model has a tendency to overestimate the number of exceedances, especially in the central and east Euro-Mediterranean. This behavior can be attributed to an overestimation of the observed peaks due to too large fire emissions most probably. The degradation of air-quality appears to be significant in both those subregions where most of the fires occurred (cf [Section 6.4.3](#), [Section 6.4.4](#)).

The daily average total and fine mode AOD at 550 nm from MODIS and CHIMERE per region is shown in [Figure 6.42](#). The variability of the simulated values is generally consistent with MODIS for all regions but we observe a general tendency of the model to underestimate the AOD and the standard deviation is clearly lower in the simulated AOD. This is more pronounced in the west and central Euro-Mediterranean where the simulated total AOD levels are (in average) lower by a factor of 2 and 1.7 respectively. The average bias in the fine mode AOD is smaller (1.5 and 1.4 respectively). We remind that in CHIMERE we use the AERONET methodology to derive the cut-off radius which is different from the methodology used in MODIS retrievals. This may result in slightly better model scores since

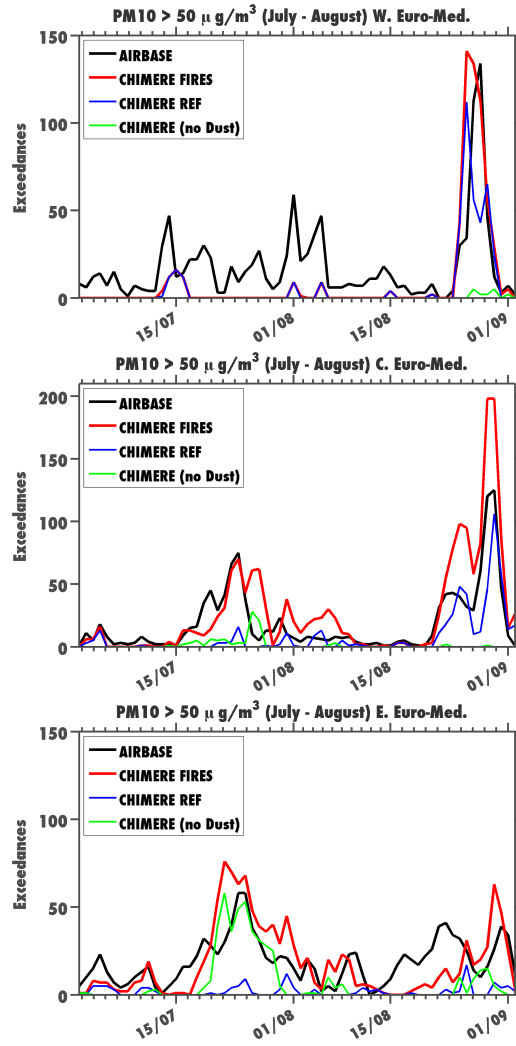


Figure 6.40 – Total number of exceedances of the daily air-quality threshold value ( $50 \mu\text{g m}^{-3}$ ) per region (west, central, east Euro-Mediterranean) during July-August 2007.

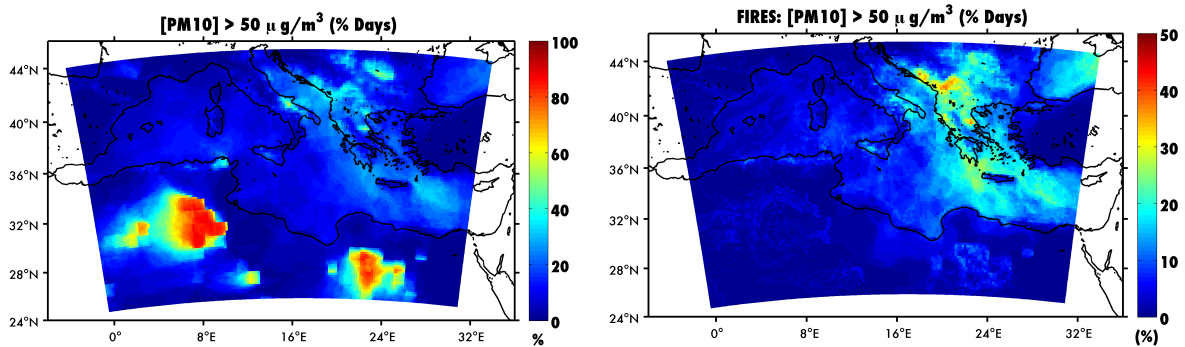


Figure 6.41 – Exceedance days (in %) of the daily air-quality threshold value ( $50 \mu\text{g m}^{-3}$ ) for the summer of 2007 for the REF (left) and REF + FIRES (right) simulations.

MODIS fine AOD is generally underestimated compared to AERONET ([Chapitre 3](#)). In the east Euro-Mediterranean where the most severe fire episode occurred the underestimation is diminished to a factor of 1.4. This is clearly due to the good representation of the July fire episode on a regional level. We note that both the mean AOD and the standard deviation as well as the temporal variability are accurately simulated for the time interval 19-31 July. The simulated fine mode AOD as well as the standard deviation are also in very good agreement during these period while in general, the models appears to slightly underestimated the observed values by a factor of 1.3.

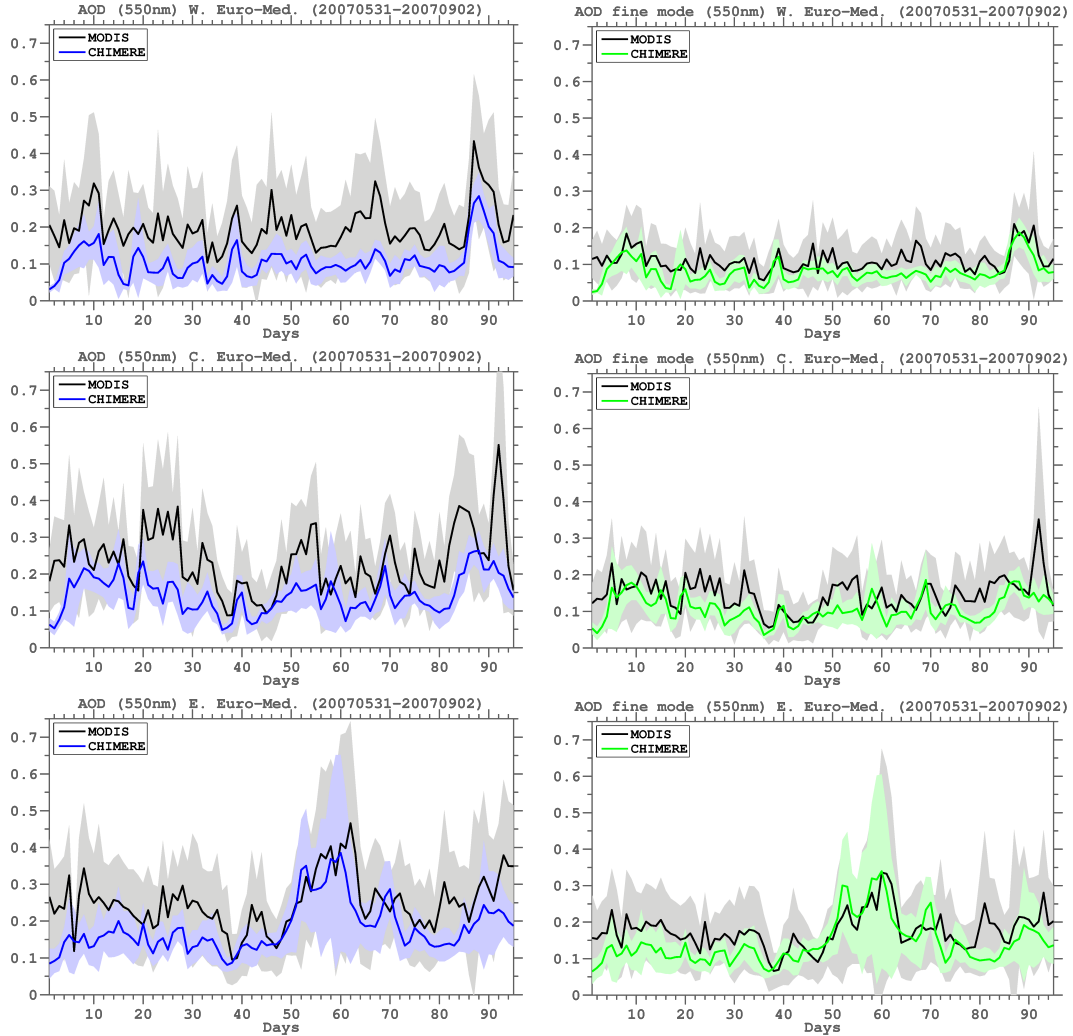


Figure 6.42 – Daily average AOD (total and fine mode) at 550 nm from MODIS and CHIMERE per region (west, central, east Euro-Mediterranean) for the summer of 2007.



## 6.5 Conclusions

The ability of the CHIMERE model to simulate regional PM concentrations and optical properties was evaluated for the summer 2007 based on comparisons to available measurements.

The **general evaluation against background AIRBASE** surface observations shows good general performances, with mean correlations of 0.63 and 0.58 for PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub>, respectively, and a clear improvement when fires are included, especially for measurement sites close to the sources. However, PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> are globally overestimated at the surface by the model. PM<sub>10</sub> are overestimated by +10% without fires and +18% with fires. In the same way, PM<sub>2.5</sub> are overestimated by +8.67% without fires and +17.78% with fires. For PM<sub>2.5</sub>, this bias is mostly due to overestimated dust in the western part of the domain and to fires in the eastern part. For PM<sub>10</sub>, part of this bias is due to an overestimate of dust from local erosion/resuspension, the long-range transport from North Africa being better captured.

**Several case studies were analyzed** in more detail to further evaluated the simulation of the regional impact of dust and fire emissions, which seem to be the most critical sources in the general evaluation.

The **19-26 June event of transport of desert dust** was simulated at the right location and time in the model, but the AOD and the plume extent are both underestimated compared to MODIS and AERONET observations. This results in a strong underestimate of the impact on surface PM<sub>10</sub>, compared to AIRBASE. Comparisons to CALIOP scattering ratio ( $R'$ ) also shows that **the plume, although captured with good general structures, is underestimated in the model**. The vertical extent is also too large, highlighting uncertainties in transport parameterization, but also a too large vertical resolution in the simulation. These results were already found in [Chapitre 5](#). Another possible influence which has not been analyzed here, is the representation of deposition in the model, which will strongly influence long-range transport. These processes should be further analyzed with additional sensitivity tests.

The analysis of **two fire events** highlighted the strong regional impact during intense events, but also the difficulties in representing their amplitude but also their temporal and spatial variability. For the 19-31 July case, the emissions are too low over the North-Western Balkans, but too high over Eastern Europe according to satellite observations. The resulting impact on surface PM is simulated at the right time compared to observations, but with an overestimate of about 40% and uncertainties on the variability of fire activity during the event. During the 24-31 August event, several major fire sources contributed in the region : the North-Western Balkans, Greece, Eastern Europe and Algeria. **The fire plumes transport pathways are correctly simulated compared to satellite AOD observations** but the fire emissions temporal variability is here again a strong uncertainty, and **the modelled AOD is underestimated**. The large plume over the Western Mediterranean at the end of the month is particularly underestimated (AOD underestimated by more than 50% at Lecce site). This plume results from a mixing of both dust and fire plumes and is thus particularly difficult to simulate accurately. Again, comparisons to CALIOP highlights the inherent difficulties of chemistry-transport models to resolve fine plumes, with overestimated vertical extents, implying too large dilution of the plumes. A better representation of fire emissions injection heights may also help improving the vertical location of the transported plumes.

Considering the difficulties in representing the large variability of dust and fire emissions, the fact that CHIMERE is able to reproduce the general structures of fire plumes and

their impact on surface PM loads variations is a significant improvement for the modeling of aerosols in the Euro-Mediterranean region. More precisely, in the western and central parts of the domain, the modelled pollution with only anthropogenic and biogenic emissions is not able to estimate accurately the number of exceedances days. Only the addition of dust and fires at the same time enables to simulate the majority of observed polluted events. In the eastern part, the addition of dust and fires is also mandatory to successfully model the exceedance days, but the relative influence of fires is dominant. A general evaluation of the impact of fires on air quality during the summer of 2007 has shown that **fires can result in up to 55% of the total observed exceedances of the pollution threshold**, even in areas far from the sources. It clearly highlights the importance of including these additional sources, in spite of the uncertainties on their emissions.

Error compensations between different aerosol species cannot be ruled out and should be considered responsible for a part of these relatively good model scores. We remind that measurement uncertainties may also be important and may result in an underestimation of the PM levels (e.g. due to the evaporation of ammonium-nitrate for TEOM instruments) and can also explain a part of these differences (e.g. [Hodzic et al. 2005](#)). The discrepancies between the model estimates and observations may be related to the parametrized chemistry like the still poorly-understood SOA formation, an erroneous spatial and temporal variability of local PM emissions as well as an inaccurate vertical mixing and transport which results in an underestimation of the observed peaks (e.g. PM<sub>10</sub> in east Euro-Mediterranean during the dust event of June).



## 7 | Conclusions générales et perspectives de travail

Ce travail s'inscrit dans le cadre des études de qualité de l'air avec pour objectif l'amélioration de la **quantification de l'impact relatif des émissions d'aérosols locales et du transport à longue distance sur la pollution régionale**. Pour ce faire, la méthodologie de travail repose sur le couplage entre observations et modélisation. Nous avons plus particulièrement exploité les mesures de concentration près de la surface d'AIRBASE, les mesures de télédétection en surface d'AERONET et les observations satellitaires de MODIS, PARASOL et CALIOP en synergie avec le modèle régional de chimie-transport CHIMERE. La région d'étude est la région Euro-Méditerranée, une région subissant l'influence de nombreuses sources de pollution différentes. Nous nous sommes particulièrement intéressés à l'étude des sources d'émissions sporadiques comme les poussières minérales et les feux de végétation qui s'avèrent significatives pour le budget d'aérosols local et même régional.

Dans les chapitres 2 et 3, j'ai détaillé les outils principaux de ce travail : le modèle de chimie-transport CHIMERE et les observations des aérosols. Concernant la modélisation des aérosols, nous avons proposé, en plus des émissions déjà incluses dans le modèle (anthropiques et biogéniques), une analyse de l'impact relatif des aérosols issus de feux de végétation et d'aérosols minéraux. Nous avons donc contribué avec ce travail à l'amélioration de notre connaissance de sources encore mal représentées dans les modèles et dont l'impact sur la qualité de l'air peut s'avérer considérable. Pour les feux de forêt, nous avons utilisé l'inventaire d'émissions développé en 2012 au LMD et dans le cadre du projet PRIMEQUAL/APIFLAME.

Nous avons, par la suite, évalué la qualité des produits satellitaires ainsi que la cohérence entre les différents capteurs pour la région d'étude, en effectuant une comparaison entre MODIS, PARASOL et AERONET. Cette étape a été menée en collaboration avec le Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA) à Lille. Nos résultats ont permis de s'affranchir des incertitudes liées aux différentes caractéristiques (e.g. résolution spatiale, longueur d'onde d'observation) et aux algorithmes de traitement des données entre les capteurs utilisés. Ainsi, nous avons mis en évidence les points forts de chaque instrument afin de pouvoir définir la meilleure stratégie pour l'analyse aussi fiable que possible des observations disponibles. Nous avons constaté que les deux satellites fournissent des informations précises sur la charge en aérosols présente dans l'atmosphère. Nos résultats suggèrent une combinaison des produits PARASOL et MODIS, notamment l'utilisation de l'AOD totale de MODIS au dessus de l'océan et l'AOD du mode fin de PARASOL au dessus de la terre.

Les objectifs techniques ont été atteints avec le développement du logiciel OPTSIM, utilisé pour la simulation des propriétés optiques des aérosols. Ce travail a été détaillé au chapitre 5. Les modèles de chimie-transport étant développés pour fournir des champs de concentrations chimiques, ils ne permettent pas une comparaison directe avec les observations par télédétection qui fournissent des paramètres optiques des aérosols. Dans ce contexte, le modèle OPTSIM a été mis en place pour la simulation des propriétés optiques des aérosols et du signal lidar à partir de champs de concentrations simulés. La valeur ajoutée de cet outil, par rapport aux outils déjà existants, est la simulation de données lidar de niveau 1. Après sa validation sur un cas académique, nous avons mené une étude pour

quantifier les principales incertitudes dans le calcul des propriétés optiques des aérosols et les conséquences pour la simulation du signal lidar. Les deux sources d'incertitude principales à considérer sont la sphéricité des particules et l'hypothèse de la diffusion simple. L'approximation de sphéricité s'avère la plus critique des deux, en particulier pour les poussières minérales. Nous avons également réalisé une analyse des limites de détection pour le lidar CALIOP et pour les espèces modèles d'aérosols considérées par CHIMERE. D'après nos résultats, ces limites sont généralement dépassées dans des conditions polluées (urbaines), mais sont en-dessous ou proches des valeurs observées en milieu peu pollué. Ce travail a fait l'objet d'un article intitulé "Lidar Signal Simulation for the Evaluation of Aerosols in Chemistry-Transport Models", publié au journal *Geoscientific Model Development* en 2012. Pour finir, il est à noter que l'outil de comparaison OPTSIM a été développé de manière flexible pour être adaptable à d'autres modèles de chimie-transport. Il est mis à disposition via une page internet dédiée<sup>1</sup>.

En exploitant la contrainte apportée par les observations sélectionnées, l'outil OPTSIM m'a permis d'identifier les forces et faiblesses de CHIMERE pour répondre complètement à la problématique principale de cette thèse. Par exemple, les premières comparaisons ont mis en évidence les faiblesses du modèle sur la simulation des poussières désertiques. Ceci a conduit à une revision de la distribution en taille des poussières minérales émises puis transportées. J'ai également réalisé des tests d'évaluation des inventaires d'émissions de feux utilisés. Les paramètres clés pour la simulation des aérosols (e.g distribution en taille, composition chimique) ainsi que le schéma de diffusion verticale et la structure verticale de panaches en fonction de la distance par rapport à la source d'émissions ont été évalués.

Dans le chapitre 4, j'ai présenté une analyse de la variabilité inter-annuelle des aérosols en région Euro-Méditerranée à partir des observations disponibles et pour toute la période de 2004 à 2010. Les mesures AIRBASE ont permis de quantifier les concentrations surfaciques d'aérosols et d'analyser leur distribution spatiale et temporelle. Elles nous ont également permis d'identifier les sous-régions qui sont les plus affectées par la pollution particulaire. Nous avons tout d'abord constaté que les stations AIRBASE disponibles en Europe présentaient encore de grandes hétérogénéités spatiales avec un réseau moins fourni à l'est du domaine. Alors que à l'ouest et au centre du domaine nous disposons d'un nombre considérable de mesures de PM<sub>10</sub> et de PM<sub>2.5</sub> pour toute la gamme de typologie des stations (rurales, de fond, urbaines et péri-urbaine). A l'est du domaine nous sommes principalement limités aux mesures de PM<sub>10</sub> en milieu urbain avec 4 à 5 fois moins de mesures que les zones "ouest" et "centre". Cependant, les mesures disponibles dans toute la région d'étude ne contiennent que très peu d'informations sur la composition chimique des particules. L'analyse des mesures d'AIRBASE a montré que les plus fortes concentrations en Europe étaient relevées en hiver, et principalement localisées en Italie du Nord et à l'est de la région avec des valeurs moyennes au-dessus du seuil de pollution réglementaire Européen. Une tendance à la baisse des concentrations moyennes a pu être indentifiée pour tous les 3 domaines ("ouest", "est", "centre"). En termes de dépassements du seuil de pollution nous avons constaté une saisonnalité qui diffère d'une région à l'autre. La variabilité saisonnière a montré qu'il n'y avait aucune région sans dépassement du seuil réglementaire Européen. Pendant la période hivernale, les sources anthropiques (industries et agricoles) contribuent aux dépassements systématiques du seuil de pollution de concentration surtout au nord de l'Europe. En revanche, nous constatons une augmentation des dépassements de seuil de pollution pendant la période estivale sur la région Méditerranéenne, liée principalement aux poussières minérales et les feux de végétation.

Les mesures du réseau AERONET et du capteur MODIS ont permis de retrouver en

---

1. [www.lmd.polytechnique.fr/optsim/](http://www.lmd.polytechnique.fr/optsim/)

terme d'épaisseur optique les zones où les concentrations sont en moyenne les plus importantes. Les valeurs moyennes annuelles ont relevé un changement clair de "propriétés optiques" autour de 40°N c'est à dire entre l'Afrique du Nord et l'Europe du Sud, avec des valeurs d'AOD moins fortes au sud de cette limite. En accord avec les mesures d'AIRBASE, l'analyse des occurrences de valeurs maximales d'AOD a pu montrer que les plus fortes valeurs d'épaisseur optique sont observées majoritairement ( $\sim$  une fois sur deux) en été et principalement autour du bassin Méditerranéen. Pendant cette période, les événements extrêmes de panaches denses (feux et dust) peuvent conduire à 3 fois plus de jours où l'AOD atteint des valeurs extrêmes. L'analyse selon différentes longueurs d'onde et en discriminant le mode fin de l'ensemble du spectre de taille a pu montrer une prédominance des aérosols en mode grossier au Sud du domaine et sur tout le pourtour Méditerranéen (contribution naturelle principalement) et des aérosols plus fins au Nord du domaine (contribution des émissions anthropiques). D'un point de vue variabilité temporelle, et contrairement aux mesures de concentrations en surface, nous n'avons pas constaté une tendance à la décroissance sur la période 2004 à 2010. Ceci n'est cependant pas contradictoire avec la décroissance apparente des concentrations en aérosols en surface. La variabilité des aérosols étant plus importante dans la colonne atmosphérique qu'en surface, peut être directement liée au transport d'aérosols issus d'émissions sporadiques mais intenses de feux et d'aérosols minéraux. Ceci est aussi à relier au fait que les maxima de concentrations de surface sont dominants en hiver, alors que les maxima d'épaisseurs optiques sont observés en été.

Mon travail de thèse se conclut par une étude sur l'impact relatif des aérosols minéraux et de feux de forêt pendant l'été 2007. L'analyse inter-annuelle avait montré que l'année 2007 n'était pas une année anormalement polluée par rapport aux autres. Par contre, l'été 2007 a été l'objet de nombreux événements de pollution intenses, principalement dus à des transports combinés de panaches d'aérosols minéraux et de feux. Nous avons tout d'abord montré que d'un point de vue modélisation, la prise en compte de sources d'aérosols minéraux et de feux de forêt était indispensable pour retrouver quantitativement le nombre de jours de dépassement de seuils en particules sur l'ensemble de la région Euro-Méditerranée. Plus en détail, l'ajout de ces sources permet d'obtenir des corrélations entre modèle et observations de 0.58 et 0.63 pour les  $PM_{2.5}$  et  $PM_{10}$ , c'est à dire des corrélations s'approchant de ce qui est généralement obtenu pour les espèces gazeuses mais qui n'était pas jusqu'à présent simulé pour les particules. L'analyse a été segmentée en plusieurs parties pour avoir une quantification plus fine de ces contributions : l'analyse statistique a été découpée en trois sous-domaines, afin de pouvoir quantifier la part relative des dust et des feux dans les résultats. On a pu ainsi montrer que les aérosols minéraux augmentaient les concentrations en particules sur l'ensemble du domaine, alors que la contribution relative des feux était majoritaire sur le bassin est de la Méditerranée. Dans le cas des feux et en termes de nombre de dépassements (reliés aux stations de mesures disponibles), on a montré que l'impact était surtout observé pour les stations proches de sources alors que les poussières minérales ont une emprise spatiale plus grande. La comparaison avec des données satellitaires a permis de montrer que le transport était bien reproduit pour l'ensemble des situations météorologiques. Si les concentrations de particules sont surestimées, on peut en conclure que cela est lié principalement aux sources elles-mêmes : mais la surestimation de 10 à 20% avec le modèle reste encourageante car représente un pourcentage relativement faible par rapport à l'incertitude existante dans le calcul des émissions, notamment connaissant le grand nombre de paramètres utilisés dans les paramétrisations actuelles. Contrairement aux concentrations de surface sur-estimées, nous avons montré que l'épaisseur optique était sous-estimée. En lien avec les données CALIOP permettant de donner une information sur la structure verticale des panaches, on a pu montrer que la combinai-

son d'une trop grande diffusion verticale du modèle et une distribution en taille à raffiner dès l'émission, conduisait à des erreurs sur le transport, le calcul des propriétés optiques et, potentiellement, le dépôt sec. Finalement, et spécifiquement pour les feux, nous avons montré que cette source particulière de particules dans l'atmosphère était responsable à elle seule de 40 à 55% des jours de dépassements cumulés pendant tout l'été et observés sur la région Euro-Méditerranée.

## Perspectives de travail

Cette thèse a permis de mettre en évidence l'importance de combinaison de plusieurs observations (en surface ou satellitaires) avec un modèle de chimie-transport. Une perspective immédiate de ce travail concerne l'extension de notre analyse sur plusieurs années et notamment de 2004 à 2010. Cela va permettre de dégager des conclusions statistiquement fortes sur l'impact relatif de différentes sources d'aérosols sur la qualité de l'air tout en exploitant le maximum des informations disponibles par les capteurs de la constellation "A-TRAIN".

De plus, notre étude, basée essentiellement sur la mise en oeuvre d'OPTSIM peut être aussi approfondie grâce à l'utilisation de mesures lidar au sol du réseau EARLINET. L'utilisation de nouvelles données lidar avec OPTSIM devra être l'occasion de revoir ce modèle notamment en améliorant la prise en compte de la forme des particules ainsi que de la diffusion multiple.

En ce qui concerne les observations, une limitation considérable dans les données CALIOP a été la contamination des profils de rétro-diffusion par la présence de nuages. Dans le cadre de ce travail, les données CALIOP ont été utilisées uniquement pour l'été 2007 : le filtrage des nuages a donc été réalisé au cas par cas, afin de s'assurer des meilleures données possibles sur cette période. Pour étendre la période, il sera sûrement nécessaire d'avoir une procédure de filtrage plus automatique et robuste, permettant d'étendre la durée de comparaison à plusieurs années.

Pour finir, l'étape supplémentaire à envisager serait la prise en compte de l'impact radiatif des aérosols par ses conséquences sur la photochimie (e.g. modification de la production d'ozone, production des SOA). Pour ce faire, le calcul des propriétés optiques dans OPTSIM devrait être couplé avec un code de transfert radiatif (e.g. TUV) pour calculer des taux de photolyse non plus tabulés mais prenant en compte directement l'effet des aérosols au fur et à mesure d'une simulation. Un couplage "on-line" entre CHIMERE et un modèle de météorologie permettrait efficacement cette prise en compte des interactions entre la pollution particulaire et la météorologie.



## A | Diagramme de Taylor

Le diagramme de Taylor (Figure A.1) permet de résumer le degré de correspondance entre un (ou plusieurs) champ "évalué" (e.g. satellite, modèle) et un champ de référence (e.g. mesures au sol) sur un graphique en coordonnées polaires à l'aide de trois quantités statistiques (Taylor, 2001). Ces quantités sont la corrélation,  $R$ , la différence des moindres carrés centrés,  $RMSD$  et l'écart-type,  $\sigma$ . Elles sont reliées par la relation suivant conformément à la loi des cosinus (Figure A.2) :

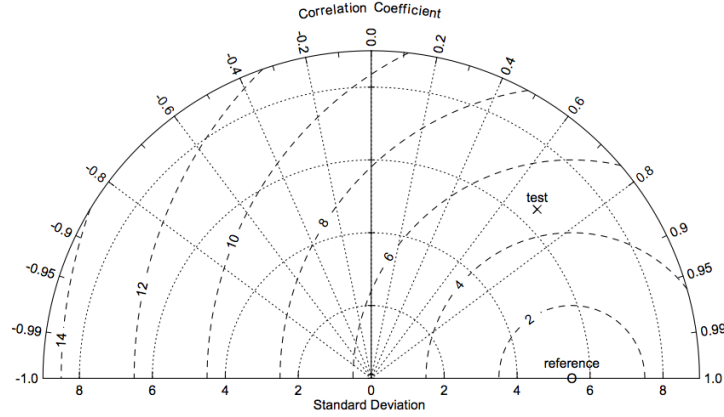


Figure A.1 – Exemple de diagramme de Taylor. La distance du point représentant le champ évaluée par rapport au point de référence est fonction de la corrélation,  $R$ , de la différence des moindres carrés centrés,  $RMSD$  et de l'écart-type,  $\sigma$  des deux champs.

$$RMSD_i^2 = \sigma_i^2 + \sigma_r^2 - 2 \cdot \sigma_i^2 \sigma_r^2 R \quad (A.1)$$

où  $\sigma_i$  et  $\sigma_r$  sont respectivement les écarts-types des données qu'on souhaite évaluer et de référence. La construction du diagramme (avec la corrélation donnée par le cosinus de l'angle azimutal notée  $\phi$ ) est basée sur la similarité de l'équation ci-dessus et la loi des cosinus :

$$c^2 = a^2 + b^2 - 2 \cdot a^2 b^2 \cos \phi \quad (A.2)$$

Nous rappelons ici les notions essentielles du diagramme de Taylor. Les axes des abscisses et des ordonnées correspondent à la valeur de l'écart-type respectivement du champ testé et de référence, donnée par la relation :

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{j=1}^N (x_j - \bar{x})^2} \quad (A.3)$$

Le coefficient de corrélation  $R$  entre le deux champs apparait sur l'arc de cercle de rayon unitaire. Il est calculé par la formule :

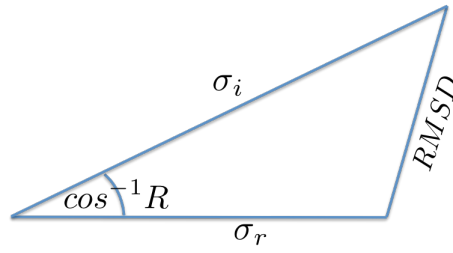


Figure A.2 – Relation géométrique parmi la corrélation,  $R$ , la différence des moindres carrés centrés,  $RMSD$  et les écarts-type,  $\sigma_i$  (champ de test) et  $\sigma_r$  (champ de reference)

$$R = \frac{\frac{1}{N} \sum_{j=1}^N (x_{ij} - \bar{x}_i) (x_{rj} - \bar{x}_r)}{\sigma_i \sigma_r} \quad (\text{A.4})$$

Enfin, la différence quadratique moyenne centrée ( $RMSD$ ) est calculée selon la formule :

$$RMSD = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N [(x_{ij} - \bar{x}_i) (x_{rj} - \bar{x}_r)]^2 \quad (\text{A.5})$$

La distance du point représentatif au champ évalué par rapport à la référence est fonction de ces trois quantités statistiques.

Ainsi, si ce champ présentait un écart-type identique aux observations, mais avec une corrélation inférieure à 1, le point correspondant serait sur l'arc de cercle de rayon unitaire en fonction de l'angle azimutal entre l'axe des abscisses et la droite qui passe par le point d'origine (0,0). Dans le cas contraire où le champ analysé serait parfaitement corrélé ( $R = 1$ ) mais son écart-type serait différent de celui du champ de référence, le point correspondant serait sur l'axe des abscisses, à une distance du point d'origine égale à la valeur de l'écart-type ( $\sigma_i$ ). télédétection

## B | Concentrations mensuelles de $\text{PM}_{2.5}$ et $\text{PM}_{10}$ en fonction de la typologie des stations

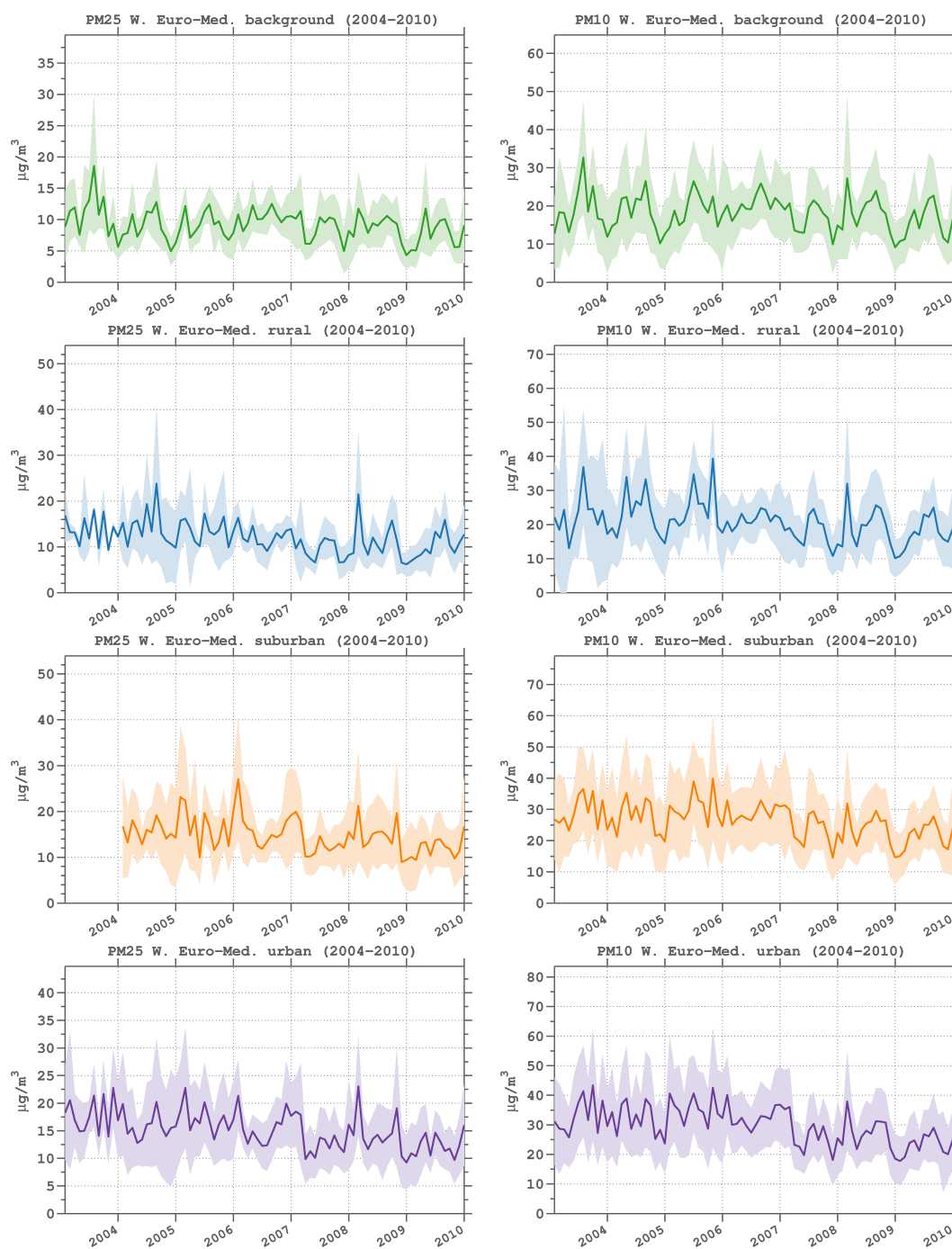


Figure B.1 – Concentrations de  $PM_{2.5}$  (haut) et  $PM_{10}$  (bas) mesurées en surface, en moyenne mensuelles et pour le sous-domaine "ouest". Les écarts-types sont retrésentés par les zones ombrées.

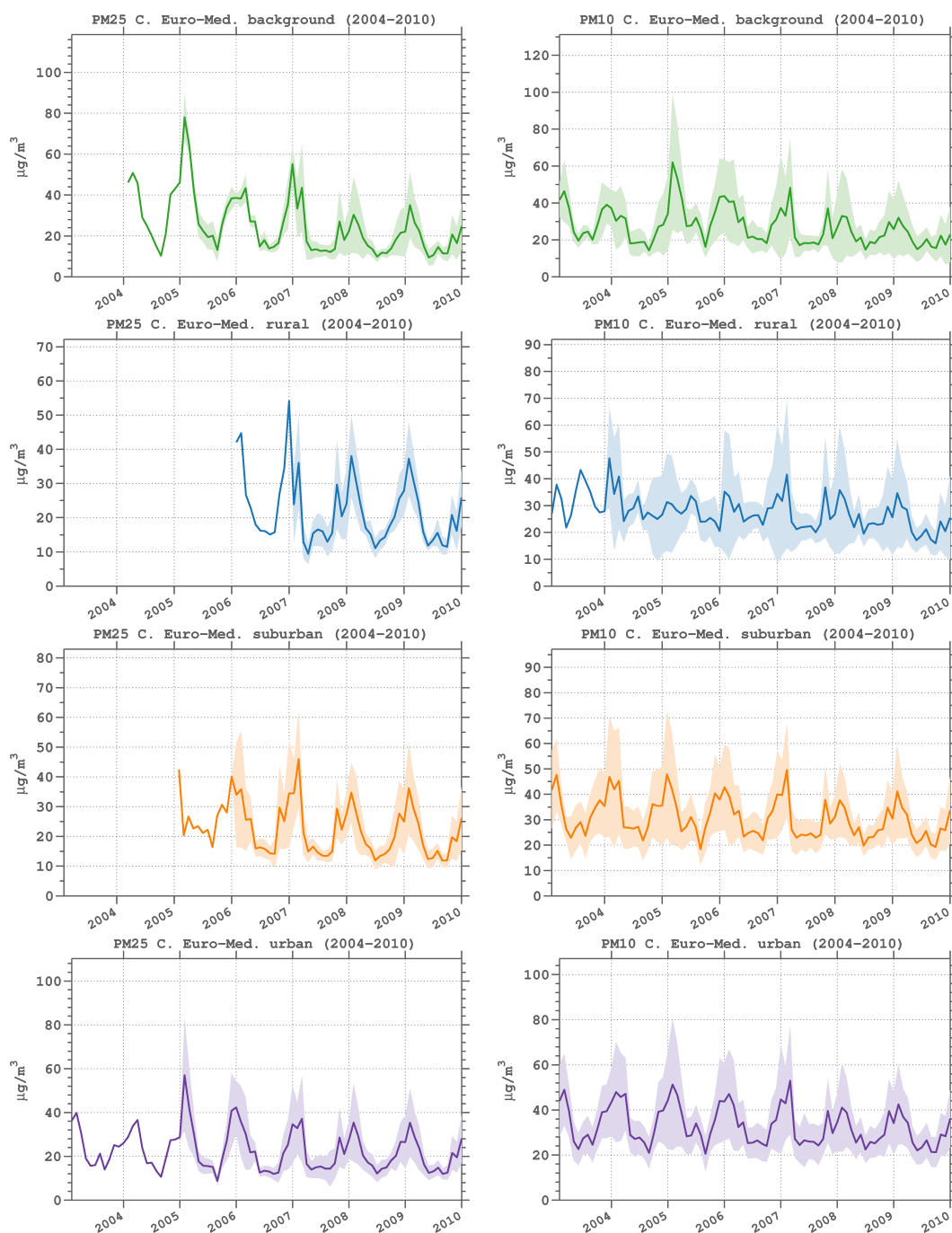


Figure B.2 – Concentrations de  $PM_{2.5}$  (haut) et  $PM_{10}$  (bas) mesurés en surface, en moyenne mensuelles et pour le sous-domaine "centre". Les écart-types sont retrésentés par les zones ombrées.

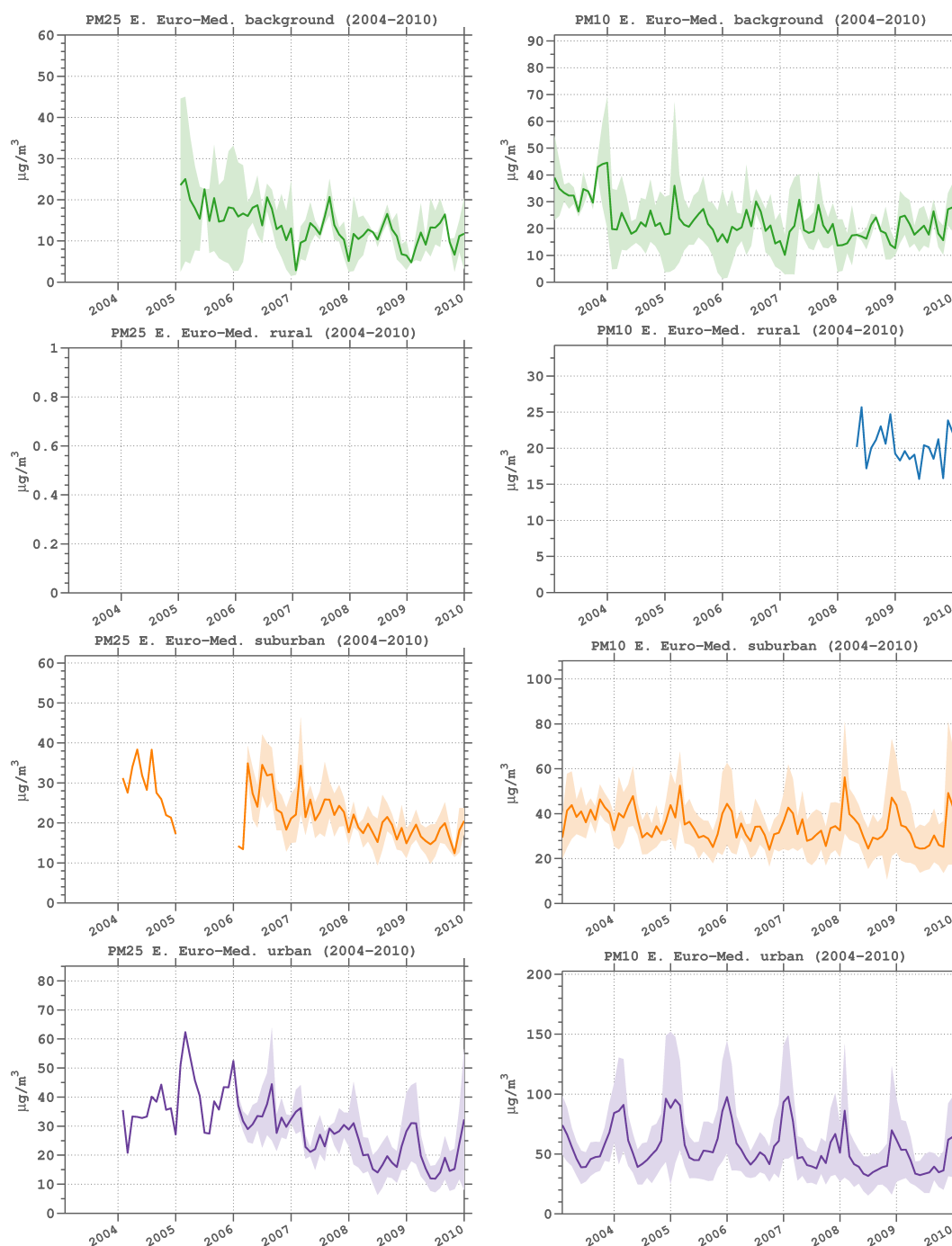


Figure B.3 – Concentrations de PM<sub>2.5</sub> (haut) et PM<sub>10</sub> (bas) mesurées en surface, en moyenne mensuelles et pour le sous-domaine "est". Les écart-types sont représentés par les zones ombrées.

## C | Lidar signal simulation for the evaluation of aerosols in chemistry transport models





# Lidar signal simulation for the evaluation of aerosols in chemistry transport models

S. Stromatas<sup>1</sup>, S. Turquety<sup>2</sup>, L. Menut<sup>1</sup>, H. Chepfer<sup>2</sup>, J. C. Péré<sup>3</sup>, G. Cesana<sup>2</sup>, and B. Bessagnet<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Institut P.-S. Laplace, Laboratoire de Météorologie Dynamique, CNRS, UMR8539, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France

<sup>2</sup>Institut P.-S. Laplace, Laboratoire de Météorologie Dynamique, Université Pierre et Marie Curie-Paris 06, 75252 Paris Cedex 05, France

<sup>3</sup>Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Université Lille 1, 59655 Villeneuve d'Ascq, France

<sup>4</sup>INERIS, Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques, Parc technologique ALATA, 60550 Verneuil en Halatte, France

*Correspondence to:* S. Stromatas (stavros.stromatas@lmd.polytechnique.fr)

Received: 10 May 2012 – Published in Geosci. Model Dev. Discuss.: 25 June 2012

Revised: 3 October 2012 – Accepted: 1 November 2012 – Published: 7 December 2012

**Abstract.** We present an adaptable tool, the OPTSIM (Optical properties SIMulation) software, for the simulation of optical properties and lidar attenuated backscattered profiles ( $\beta'$ ) from aerosol concentrations calculated by chemistry transport models (CTM). It was developed to model both Level 1 observations and Level 2 aerosol lidar retrievals in order to compare model results to measurements: the level 2 enables to estimate the main properties of aerosols plume structures, but may be limited due to specific assumptions. The level 1, originally developed for this tool, gives access to more information about aerosols properties ( $\beta'$ ) requiring, at the same time, less hypothesis on aerosols types. In addition to an evaluation of the aerosol loading and optical properties, active remote sensing allows the analysis of aerosols' vertical structures. An academic case study for two different species (black carbon and dust) is presented and shows the consistency of the simulator. Illustrations are then given through the analysis of dust events in the Mediterranean region during the summer 2007. These are based on simulations by the CHIMERE regional CTM and observations from the CALIOP space-based lidar, and highlight the potential of this approach to evaluate the concentration, size and vertical structure of the aerosol plumes.

## 1 Introduction

Aerosols are key for air quality monitoring due to their impact on human health (Pope et al., 2002), visibility (Wang et al., 2009) and biogeochemical cycles (Andreae and Merlet, 2001; Shinn et al., 2000). Through their influence on the Earth radiative budget and cloud microphysics, they also impact meteorological conditions and climate (Forster et al., 2007). In addition to a local effect, aerosol plumes may be transported for long distances with significant direct and indirect effects on atmospheric composition (Monks et al., 2009) at regional (Bessagnet et al., 2008) to hemispheric scales (Stohl et al., 2002).

While their importance is fully recognised, the assessment of their impact remains poorly quantified due to numerous uncertainties on their emissions, properties and evolution during transport. Model inter-comparisons, such as those of the AeroCom project (e.g. Textor et al., 2007), reveal the need to better quantify the large variabilities in terms of size, morphology and chemical composition of aerosols. More specifically, key species like black carbon (e.g. Koch et al., 2009), mineral dust (e.g. Huneeus et al., 2011) or secondary organic aerosols (e.g. Hallquist et al., 2009) remain generally inadequately modelled, leading to an incomplete description of the aerosol budgets in the atmosphere.

The simulation of the long-range transport of aerosol plumes requires an accurate representation of their vertical structure (e.g., location, spread). It affects aerosol lifetime

(e.g. Keating and Zuber, 2007) and, as a result, surface concentrations. Moreover, it has an impact on aerosol-cloud interactions (e.g. Waquet et al., 2009, and references therein) and on aerosol radiative forcing (e.g. Zarzycki and Bond, 2010; Zhu et al., 2007).

The availability of satellite observations has greatly enhanced our ability to evaluate models. They complement surface and in situ measurements by providing a large scale context. In particular, the A-Train constellation of satellites allows simultaneous measurements from complementary instrumentation. Passive remote sensors (MODIS on board AQUA, TERRA or POLDER-3 on board PARASOL) allow the analysis of total aerosol loading through aerosol optical depth (AOD) retrieval (Remer et al., 2005; Tanré et al., 2011) with good spatiotemporal resolution (almost global daily with pixel size of  $\sim 10$  km). These satellite observations have been shown to offer useful insight into the spatial and temporal variability of particulate matter by both biogenic (e.g. Liu et al., 2008) and anthropogenic sources (e.g. Kaufman et al., 2005). Recent studies have shown their ability to constrain emissions using inverse modelling to estimate their sources (e.g. Dubovik et al., 2008), global budgets (Heald et al., 2010), and surface particulate matter (PM) concentrations (van Donkelaar et al., 2006). These observations have also been widely used for the analysis of long-range transport pathways (Hodzic et al., 2007; Ridley et al., 2012) and regional simulations of aerosols through their optical properties (Péré et al., 2009). However, passive satellites provide column-integrated aerosol properties. Thus, they offer limited information on the vertical distribution of aerosols within the atmosphere.

The complementary active remote-sensing observations of the Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarisation (CALIOP) lidar in space (on board CALIPSO, also part of the A-Train) provide valuable information on the vertical distribution of aerosols (Winker et al., 2009). They were used in several recent studies for the evaluation of chemistry transport model (CTM) simulations (e.g. Yu et al., 2010; Ford and Heald, 2012; Ridley et al., 2012). The classic approach for comparing model simulations and satellite observations is using the level 2 (L2) retrievals, which are derived from the Level 1 (L1) observations. The reliability of L2 retrievals is constantly improving (V3 data products have considerably improved compared to the V2 release), and these data have proven to be very useful for analysing aerosol-related pollution events. However, it is a well-documented fact that they are prone to uncertainties (Liu et al., 2009; Omar et al., 2010; Young and Vaughan, 2009; Winker et al., 2009). More specifically, the accuracy of these products depends to a large extent on the uncertainties of each step (algorithm) in the processing chain. A key parameter that is used to derive L2 products (backscatter and extinction coefficients) from attenuated backscatter profiles (L1 data) is the extinction-to-backscatter ratio (lidar ratio). The mean values used are based on prescribed bi-modal size distributions and characteristic com-

plex refractive indices according to the observed natural variability for each aerosol species. The estimated values may diverge from the correct values if the identified layer is wrongly classified (e.g., dense smoke aerosol layers can be misclassified as clouds, Liu et al., 2009) or if incorrect estimates of the aerosol type (e.g., dust misclassified as polluted dust, Omar et al., 2010) are used (Young and Vaughan, 2009). Natural variability can also be the cause of an erroneous estimation of the lidar ratio which will, of course, result into a biased retrieval.

For example, although CALIPSO L2 dust observations are found to exhibit reasonable agreement with ground measurements, some considerable discrepancies still exist in lidar ratio values between CALIPSO and ground measurements. More specifically, the range of different lidar ratio values in the CALIPSO Lidar Ratio selection algorithm is rather narrow compared to the values reported in the literature (e.g. Schuster et al., 2012, and references therein).

Since aerosol type and properties assumptions in the retrievals may not be consistent with the model simulations, using comparisons to L2 retrievals for model evaluation may be difficult to interpret. To avoid these complications, we provide a methodology for direct comparisons to L1 observations of the total attenuated backscattered profiles from the CALIOP level 1B V3.01 dataset.

This approach has already been applied for comparisons between airborne lidar measurements and CALIOP for the analysis of field campaigns (de Villiers et al., 2010), for comparisons between model and surface lidar observations (Hodzic et al., 2004), CALIOP observations of clouds (Chepfer et al., 2008) and dust aerosols (Vuolo et al., 2009). Model-derived attenuated backscatter profiles were also used (Generoso et al., 2008) to study dust outflow over the Atlantic, however, their method is based on estimations of lidar ratio values. The OPTSIM simulator presented here is a flexible post-processing tool for chemistry transport models that generalises this methodology for the simulation of all aerosol type. For comparisons to models, the L2 and L1 profiles that would be observed by a lidar in the same atmospheric conditions as those predicted by the model are calculated.

After a general description of OPTSIM (Sect. 2), we present a test on an academic case study in Sect. 3. The simulator is then applied on a real test case. We use the information provided by the CALIOP observations for the analysis of dust events in the Euro-Mediterranean region, regularly affected by long-range transport of Saharan dust (Querol et al., 2009; Lelieveld, 2002). The observations used are described in Sect. 4 and the CHIMERE CTM in Sect. 5. The results and discussion are presented in Sect. 6.

## 2 Modelling aerosol optical properties

### 2.1 Aerosol optical scheme

The first step for modelling aerosol optical properties was to develop an aerosol optical scheme dedicated to the evaluation of vertically integrated particle loading (optical depth) as presented in (P  r   et al., 2010). This module was specifically designed to calculate aerosol properties directly comparable to AERONET data and satellite retrievals (L2 products). It provides maps of aerosol optical depth (AOD) and other optical properties, such as the Single Scattering Albedo (SSA) and the asymmetry factor ( $g$ ), based on simulated atmospheric chemical concentration fields.

The AOD or  $\tau_{\text{ext}}$ , which represents the attenuation of the incident solar radiation light by atmospheric particles, depends on the wavelength ( $\lambda$ ). For a layer thickness  $\Delta z$ , it is calculated as:

$$\tau_{\text{ext}}(\lambda, z) = \int_{\Delta z} \sigma_p^{\text{ext}}(\lambda, z') dz' \quad (1)$$

This requires the calculation of the extinction coefficient (by particles),  $\sigma_p^{\text{ext}}(z, \lambda)$  [ $\text{m}^{-1}$ ] as:

$$\sigma_p^{\text{ext}}(z, \lambda) = \int_{R_{\min}}^{R_{\max}} \pi R^2 Q_{\text{ext}}(\eta, R, \lambda) \cdot N_p(R, z) dR \quad (2)$$

where  $Q_{\text{ext}}$  is the extinction efficiency, depending on the refractive index ( $\eta$ ), the particles radius ( $R$ ) and the wavelength ( $\lambda$ ).  $N_p$  represents the particle concentration in number ( $\text{m}^{-3}$ ). The complex refractive indices and density values are taken from the ADIENT/APPRAISE technical report (<http://www.met.reading.ac.uk/adient/>).

The effect of relative humidity on the size of water-soluble aerosols and, therefore, on the refractive index is accounted for by using a growth model as described in H  nel, 1976. A mean particle density is similarly defined. Finally, in this study, we consider a homogeneous internal mixing of the different chemical species, but a core-shell mixing can also be chosen (user's specifications). For the case of a homogeneous ensemble of spheres, the optical properties for the particles considered are computed using a Mie code de Rooij and van der Stap, 1984 while for the core-shell mixing scenario, the Wiscombe Mie code for coated spheres is used based on the formulas presented in (Toon and Ackerman, 1981). Non-sphericity of particles such as mineral dust is theoretically and experimentally identified as a source of bias in simulated aerosol optical properties (e.g. Dubovik et al., 2002b) and should be considered cautiously when interpreting the results. A preliminary analysis of the associated uncertainties is presented in Sect. 3.1.4.

Finally, note that this version of the code is developed for a CTM using a sectional representation of the aerosols population. The size distribution is represented by size sections

**Table 1.** List of variables required as input to the OPTSIM software and their corresponding name to be read in a netCDF input file for the default version of the code.  $N_z$  corresponds to the number of vertical layers in the profiles,  $N_b$  to the number of size bins and  $N_{\text{obs}}$  to the number of observations to be processed.

Variable	Data and dimensions		Units
Time	Time	( $N_{\text{obs}}$ )	h
Longitude	lon	( $N_{\text{obs}}$ )	degrees
Latitude	lat	( $N_{\text{obs}}$ )	degrees
Meteorology			
Temperature	temp	( $N_{\text{obs}} \times N_z$ )	K
Air density	airmloc	( $N_{\text{obs}} \times N_z$ )	molecules $\text{cm}^{-3}$
Relative humidity	rh	( $N_{\text{obs}} \times N_z$ )	%/100
Altitude	hlay	( $N_{\text{obs}} \times N_z$ )	m
Atmospheric composition			
Concentration	conc	( $N_{\text{obs}} \times N_z \times N_b$ )	$\mu\text{g m}^{-3}$
Cut-off diameters	cut_off_diameters	( $N_b$ )	m

(bins). Each bin corresponds to a specific diameter range while the cut-off diameters are provided for each bin. This can be modified according to the model configuration. The aerosols size distribution is interpolated to a finer resolution to ensure the best integration as possible where the aerosol concentration number is optically active.

### 2.2 Lidar signal analysis and modelling

In this section, we present in more detail a new application included in the simulator: the modelling of the L1 lidar signal. A general overview of the lidar signal modelling is displayed in Fig. 1. The first column represents a model column, where aerosol concentrations ( $c_i$ ) are available in grid cells for several model levels ( $z_i$ ). This leads to a vertical concentration profile, where each  $c_i$  concentration represent the mean value between  $z_{i-1}$  and  $z_i$  ( $z_0$  representing the ground). Based on this concentration profile, we simulate the lidar signal that would be observed by a lidar in space (third column) or by a ground based lidar (fourth column).

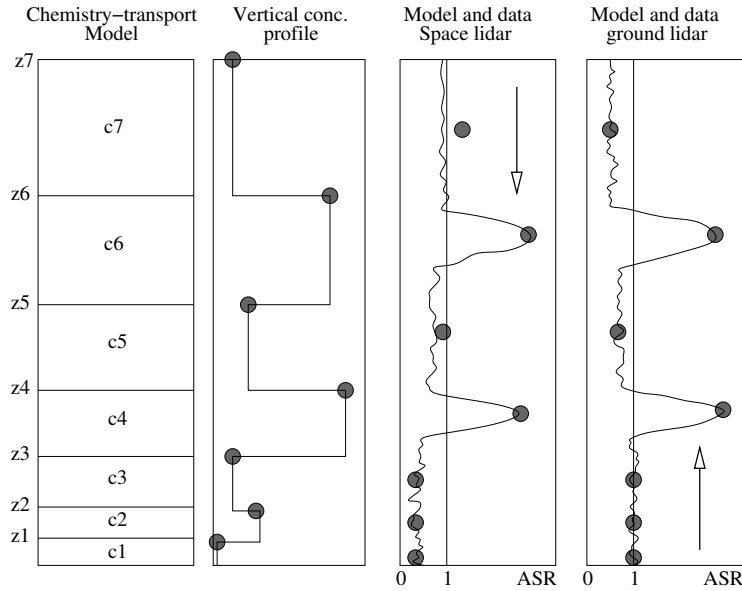
The calculation of the lidar signal from simulated aerosol concentration fields requires some additional parameters than those used for the AOD. These parameters, mainly meteorological, are listed in Table 1.

The simulation of L1 lidar profiles requires the calculation of the backscatter coefficient,  $\beta$  (in  $\text{km}^{-1}\text{sr}^{-1}$ ) which is directly comparable with the L2 backscatter coefficient of CALIOP. It is computed as:

$$\beta_{\text{sca}} = \sigma_p^{\text{sca}}(z, \lambda) \cdot P_{\pi}/4\pi \quad (3)$$

where  $\sigma_p^{\text{sca}}(z, \lambda)$  is the scattering coefficient (cf. Eq. 2) and  $P_{\pi}/4\pi$  is the backscatter-to-extinction ratio.

In order to efficiently compare modelled and measured lidar profiles, the simulator is designed to also calculate the Attenuated Scattering Ratio,  $R'(z)$ . By definition,  $R'(z)$  is



**Fig. 1.** Overview of the comparison methodology: example of the modelled Attenuated Scattering Ratio (ASR or  $R'(z)$ ) estimation from initial concentration profiles (middle-left panel) on a specific model vertical grid (left panel) in the case of a space lidar (middle-right panel) or a ground lidar (right panel). The grey dots correspond to the value reported in the model simulation.

equal to 1 in absence of aerosols/clouds and when the signal is not attenuated. In the presence of aerosols,  $R'(z)$  will generally be greater than one, however, this value may vary as a function of the quantity and attenuation properties of the aerosol layer. Following Winker et al. (2009), this ratio is expressed as:

$$R'(z) = \frac{\beta'(z)}{\beta'_m(z)} \quad (4)$$

where

$$\beta'(z, \lambda) = \left[ \frac{\sigma_m^{\text{sca}}(z, \lambda)}{S_m(z, \lambda)} + \frac{\sigma_p^{\text{sca}}(z, \lambda)}{S_p(z, \lambda)} \right] \cdot \exp \left( -2 \left[ \int_z^{\text{TOA}} \sigma_m^{\text{ext}}(z', \lambda) dz' + \eta' \int_z^{\text{TOA}} \sigma_p^{\text{ext}}(z', \lambda) dz' \right] \right) \quad (5)$$

and

$$\beta'_m(z, \lambda) = \frac{\sigma_m^{\text{sca}}(z, \lambda)}{S_m(z, \lambda)} \cdot \exp \left( -2 \int_z^{\text{TOA}} \sigma_m^{\text{ext}}(z', \lambda) dz' \right) \quad (6)$$

$\beta'(z, \lambda)$  and  $\beta'_m(z, \lambda)$  are, respectively, the total and molecular attenuated backscatter signal.  $\sigma_p^{\text{sca/ext}}(z, \lambda)$  and  $\sigma_m^{\text{sca/ext}}(z, \lambda)$  are the extinction/scattering coefficients for particles and molecules (in  $\text{km}^{-1}$ ).  $S_m$  (respectively  $S_p$ ) is the molecular (respectively particular) extinction-to-backscatter ratio (in sr).

Finally,  $\eta'(z)$  represents multiple scattering and  $z$  represents the distance between the emitter and the studied point. Note that for the case of a space lidar the integration begins from the top of the atmosphere (TOA) while for a ground lidar the integration begins from 0 (ground level) to  $z$ .

The molecular contribution ( $\sigma_m$  and  $S_m$ ) is calculated theoretically. In order to remain consistent with the observations, we have implemented in OPTSIM the same equation as the one used to derive the molecular backscattering coefficient for producing the CALIOP attenuated backscatter profiles (Hostetler et al., 2006). When the vertical distribution of pressure ( $P$ ) and temperature ( $T$ ) is known, the molecular backscattering coefficient can be expressed as:

$$\sigma_m^{\text{sca}} = \frac{P}{k_B T} \cdot \frac{s_{\text{sca}, \text{mol}}(\pi)}{S_m} \quad (7)$$

with  $k_B$  being the Boltzmann constant and  $s_{\text{sca}, \text{mol}}$  the molecular scattering cross section (in  $\text{m}^2$ ), given by:

$$s_{\text{sca}, \text{mol}} = 4.5102 \cdot 10^{-31} \cdot \left( \frac{\lambda}{0.55} \right)^{-4.025 - 0.05627 \cdot (\lambda/550) - 1.647} \quad (8)$$

Note that  $S_m = (8\pi/3)k_{\text{bw}}(\lambda)$  where the dispersion of the refractive index and King factor of air are quantified by  $k_{\text{bw}}$ .

The molecular extinction coefficient  $\sigma_m^{\text{ext}}$  is given as a function of  $\sigma_m^{\text{sca}}$ :

$$\sigma_m^{\text{ext}} = \frac{8\pi}{3} \cdot \sigma_m^{\text{sca}} \quad (9)$$

The contribution of particulate matter ( $\sigma_p$  and  $S_p$ ) can be written as a function of the PM concentration ( $N_p$  in  $\text{m}^{-3}$ ) and on the particle scattering/extinction efficiency ( $Q_{\text{sca/ext}}$ ) which depends on the refractive index, the size of particles and the wavelength ( $\lambda$ ) (cf. Eq. 2).

Note that multiple scattering effects are not taken into account here ( $\eta$  is set to 1 in Eq. 5). The single scattering approximation is adequate for small optical depths and non-absorbing aerosols in passive remote sensing (e.g. Gordon, 1997). However, large scattering particles (e.g., mineral dust) could lead to non-negligible multiple scattering effects that may need to be taken into account especially in active remote sensing (e.g. Wandinger et al., 2010). Uncertainties arising from this approximation are evaluated in Sect. 3.1.4.

Finally, we also simulate the color ratio ( $\chi'$ ) which corresponds to the ratio between two lidar profiles observed simultaneously at two different wavelengths ( $\lambda_1 = 1064$  nm and  $\lambda_2 = 532$  nm) :

$$\chi'(z) = \frac{\beta'_{\lambda_1}(z)}{\beta'_{\lambda_2}(z)} \quad (10)$$

Since scattering is more efficient when the wavelength is of the same order of magnitude as the particle diameter,  $\chi'$  provides information on the size of the particles in the backscattering layers and, hence, on their nature (cloud droplets, dust or pollution aerosols for instance). It is expected to be lower than 1 for small particles compared to wavelengths. However, in the case of highly absorptive (e.g., smoke) particles and when the aerosol layer is sufficiently thick, the color ratio can become larger than 1, because the absorption at 532 nm is significantly larger than at 1064 nm). Moreover,  $\chi'$  cannot be used directly as an aerosol type identification tool, since there is a significant overlap between the distributions of  $\chi'$  for different aerosol types (Omar et al., 2010). Therefore, it should be used only as a qualitative identification of large/small particles.

For flexibility and computational efficiency, the optical code and the lidar simulator are intentionally designed to process a series of profiles. As our purpose is to compare the model simulations with satellite retrievals (or ground measurements) a preparatory code is used to co-locate spatially ( $\pm 0.25^\circ$ ) and temporally ( $\pm 30$  min) and extract the necessary parameters (henceforth as profiles) from the outputs of the model according to the satellite orbit track (or surface site location) selected.

### 3 Simulator validation with an academic test case

In order to validate each step of the calculation, an academic case study is conducted considering simplified atmospheric conditions: only one species and a constant concentration in selected size sections and altitude levels.

The species selected for this demonstration are black carbon (BCAR) and mineral dust (DUST). The main difference

**Table 2.** Theoretical and calculated AOD at  $\lambda = 532$  nm per size section.

Bin	Size Diameter ( $\mu\text{m}$ )	Aerosol Optical Depth		
		Theoretical	Simulated	Error (%)
1	0.039–0.078	0.3434	0.3467	0.9720
2	0.078–0.156	0.4682	0.4788	2.2726
3	0.156–0.312	0.5939	0.5858	−1.3714
4	0.312–0.625	0.3574	0.3485	−2.4892
5	0.625–1.250	0.1617	0.1587	−1.8692
6	1.250–2.500	0.0743	0.0732	−1.4374
7	2.500–5.000	0.0348	0.0345	−0.8607
8	5.000–10.00	0.0166	0.0165	−0.5518
Total		2.0502	2.0427	
Mean				−0.6669

between these species is that BCAR is strongly absorbing while extinction of the solar radiation from DUST is resulting mainly from scattering.

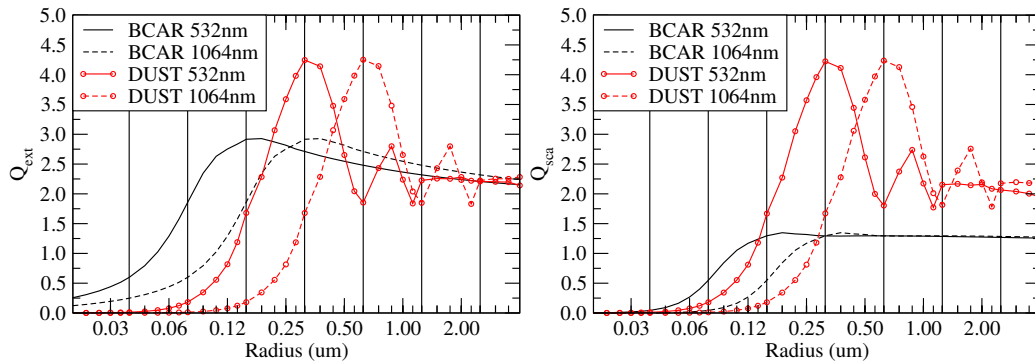
### 3.1 Configuration of the simulator

For this case study, we distribute a 5 ppbv concentration ( $\sim 17$ – $20 \mu\text{g m}^{-3}$  depending on altitude) in only one of the size sections of the model at a time. The size distribution for this academic test case is characterised by 8 initial bins (from 40 nm to  $10 \mu\text{m}$ , cf. Table 2). The concentration in each initial size section is redistributed to 5 new smaller (equally sized) size sections for higher accuracy in the calculation of the aerosol optical properties. The choice of 40 bins (instead of the initial 8) is made as a function of desired accuracy and computation time (not shown here).

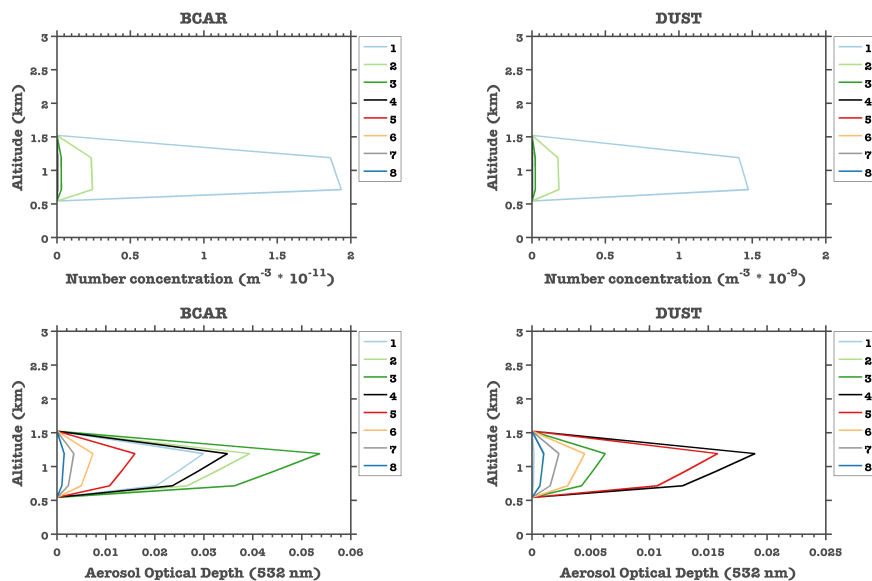
We also consider 18 vertical levels extending from the surface to 200 hPa. Vertically, the concentration is located in the lower troposphere, between  $\sim 700$  and  $\sim 1200$  m. This configuration allows us to identify the variability of the calculated parameters as a function of the particle's size.

The refractive indices used for the calculation of their optical properties are shown in Table 3. The scattering and extinction efficiencies calculated for this configuration are shown in Fig. 2. The evolution of these efficiencies as a function of particle size and wavelength will determine the behaviour of the particle optical properties (and, thus, of the AOD) as well as the lidar signal, as discussed below.

First of all, in order to verify the correct computation of the AOD in our code, we calculate independently the theoretical AOD that would result from such conditions and compare them with our results. We achieve an agreement of 99.63 % for the total theoretical AOD. On average, the simulator presents a small negative bias (truncation error). The main source of this bias originates from the interpolation to 40 size sections which affects the computation of  $Q_{\text{ext}}$  and  $Q_{\text{sca}}$ . For the theoretical case, we also have calculated the total optical depth using finer discretisation of the size sections.



**Fig. 2.** Black carbon (BCAR) and mineral dust (DUST) extinction ( $Q_{\text{ext}}$ ) and scattering ( $Q_{\text{sca}}$ ) efficiencies as a function of size (radius) for 2 different wavelengths ( $\lambda = 532, 1064$  nm).



**Fig. 3.** Profiles of BCAR and DUST concentrations in number and AOD per size section (bin) as a function of altitude and for a wavelength of 532 nm.

The overall bias of this choice was found to be +7 % for the total AOD (for  $40 \times 10^5$  bins).

### 3.1.1 Aerosol optical depth

The AOD computed at 532 nm for the configuration described above and for each vertical level is presented in Fig. 3. As expected, we observe an increase at altitude levels where the concentration was located.

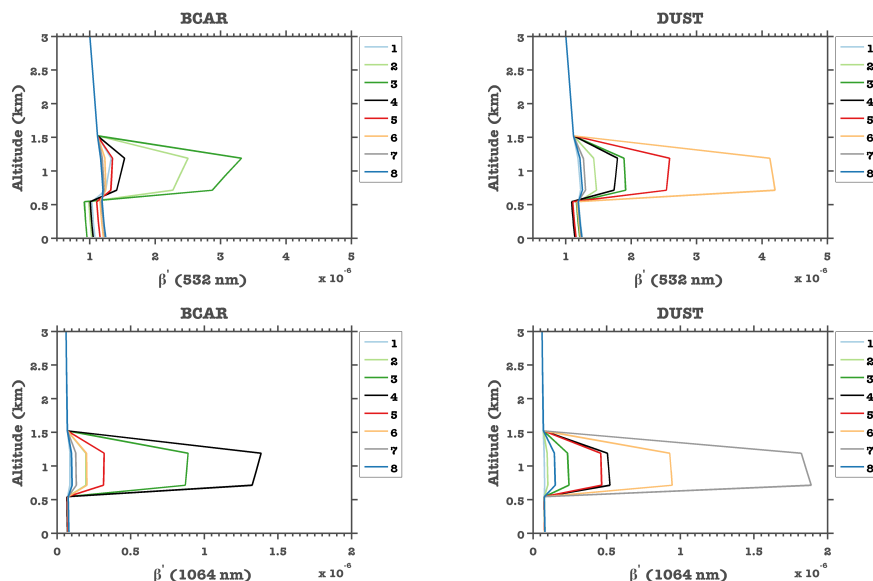
For the BCAR case, the highest value ( $\tau = 0.053$ ) is reached when the aerosol load is distributed in the  $0.156\text{--}0.312\text{ }\mu\text{m}$  bin. AOD is also higher for an increase in the smallest size range ( $< 0.078\text{ }\mu\text{m}$  bin) than in the largest one ( $5\text{--}10\text{ }\mu\text{m}$ ), with maximum AOD of  $\tau = 0.030$  and  $\tau = 0.001$ , respectively. This is explained by the evolution of the number concentration ( $N$ ) of the particles, which decreases from

$1.86 \times 10^{11}\text{ m}^{-3}$  in the first bin to  $0.6 \times 10^5\text{ m}^{-3}$  in the 8th bin, while the mass concentration remains constant. As a result, the maximum AOD is shifted to smaller sizes than that of maximum extinction efficiency ( $0.312\text{--}0.625\text{ }\mu\text{m}$  bin for 532 nm), where  $N$  is larger.

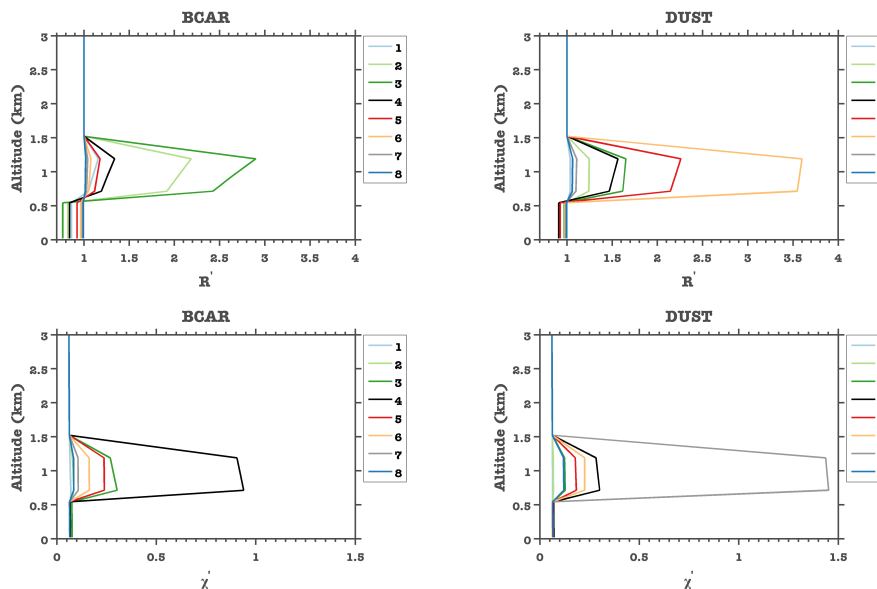
A similar behaviour is observed for the DUST case. The AOD (for  $\lambda = 532$  nm) presents its maximum (0.019) in the  $0.312\text{--}0.625\text{ }\mu\text{m}$  bin as a function of the scattering/extinction efficiency and of the number concentration of particles.

### 3.1.2 Attenuated backscatter coefficient

The  $\beta'$  profiles calculated for this academic case (for both species) at two different wavelengths ( $\lambda = 532$  et  $1064$  nm) are plotted in Fig. 4, showing a behaviour similar to that of the AOD. Its dependence on the aerosol size and, as a result,



**Fig. 4.** Profiles of attenuated backscatter ( $\beta'$ ) for BCAR (left) and DUST (right), per size section (bin) as a function of altitude for  $\lambda = 532$ , 1064 nm.



**Fig. 5.** Profiles of attenuated scattering ratio ( $R'$ ) and color ratio ( $\chi'$ ) for BCAR (left) and DUST (right) per size section as a function of altitude.

on  $Q_{\text{ext}/\text{sca}}$  and  $N$ , is highlighted in the BCAR case, for example, by a maximum value ( $3.32 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ ) in the  $0.156\text{--}0.312 \mu\text{m}$  bin in the  $\sim 700\text{--}1200$  m altitude layer. Similarly, its maximum ( $1.38 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ ) at 1064 nm is obtained for the  $0.312\text{--}0.625 \mu\text{m}$  bin.

Below the simulated plume ( $<700$  m),  $\beta'$  (at 532 nm) decreases due to the extinction by the aerosol layer during integration from the TOA to the surface. At 1064 nm where

the extinction is small,  $\beta'$  values return to the same values as before the aerosol layer. This is less pronounced, but still observed in the DUST case where the extinction is of smaller magnitude (Fig. 3).



### 3.1.3 Scattering and color ratios

The  $R'(z)$  and  $\chi'(z)$  profiles associated to the  $\beta'$  presented above (Fig. 4) is shown in the Fig. 5 (top). Their variability is directly related to that of  $\beta'$  for both species.

For really small particles ( $R/\lambda < 0.1$ ) the  $\beta'_{1064}/\beta'_{532}$  ratio is almost constant. In this case, extinction controls the evolution of  $\chi'$  with altitude Fig. 5 (bottom). At the 0.312–0.625  $\mu\text{m}$  bin where extinction at 1064 nm is maximum and the backscattering coefficient  $\beta$  becomes higher (Fig. 2) than the one at 532 nm, we obtain  $\beta'_{1064} > \beta'_{532}$ . Consequently,  $\chi'$  reaches its highest value. When the two  $\beta$  coefficients begin to converge, extinction is decreasing which results in a decrease of  $\chi'$ .

### 3.1.4 Uncertainties in lidar parameters

The calculation of the aerosol optical properties in OPTSIM is subject to two main sources of uncertainties: the limitation to single scattering and the assumption that all particles are spherical.

Multiple scattering becomes critical in the case of dense aerosol layers ( $\text{AOD} \geq 1$ ) as discussed in Liu et al. (2011). In the same study, it was found that the impact of multiple scattering is small when the dust extinction is smaller than  $1 \text{ km}^{-1}$ , while it can be large when the extinction is equal to  $2 \text{ km}^{-1}$  or larger. Wandinger et al. (2010) showed, by comparing CALIPSO and ground-based dust observations on a case study, that neglecting this effect can result in a reduction of the extinction coefficient by 20 % to 30 % (for effective radii of 3 and 6  $\mu\text{m}$  and for the CALIOP geometry). According to CALIPSO quality assessment report, in the case of dense aerosol layers, the uncertainty introduced due to multiple scattering is estimated on average at the 10–20 % level. In order to quantify the bias in our simulations due to multiple scattering, we have conducted a sensitivity study using different  $\eta'$  values (Fig. 6). According to the estimations given above and Winker et al. (2003), we consider that dust  $\eta'$  values vary between 0.6 and 0.9 as a function of the layer's thickness. For aerosol layers deeper than 500 m,  $\eta'$  is greater than 0.85 and so the multiple scattering has only a small effect (Winker et al., 2003). The greatest divergence (2.08 %) from the reference case value ( $\eta'=1$ ) is obtained for  $\eta'=0.6$  which is considered an extreme value. In general, the differences are higher in the 4th size section, for which extinction is highest (Sect. 3.1.1) as multiple scattering mainly affects extinction.

The behaviour of  $\chi'$  is more complicated. We notice a general slight decrease (maximum  $-1.7$  % for  $\eta'=0.6$ ) which is always more pronounced in the 4th size section. However, there is also a marginal increase in the 6th size section. This can be explained by the difference in extinction between 532 and 1064 nm (cf Sect. 3.1.2). More specifically, in this size section,  $\beta'_{1064}$  is increasing slightly more (0.86 %) than  $\beta'_{532}$  (0.48 %) which results in a higher  $\chi'$ .

The spherical shape approximation is more critical, especially for mineral dust. The non-spherical shape of dust particles is known to reduce the backscattering efficiency and increase the extinction-to-backscatter ratio (lidar ratio) compared to surface-equivalent spheres (e.g. Mishchenko et al., 1997; Mattis et al., 2002, and references therein), but with lower influence on the extinction coefficient (e.g. Müller et al., 2003). Indeed, the shape of aerosols has strong impact on the phase function, especially in the backward direction ( $180^\circ$ ) where it is lower for non-spherical particles (e.g. Mishchenko et al., 1997). Müller et al. (2003) showed that errors in the phase functions may reach 50 % if the wrong particle shape is considered. Gasteiger et al. (2011) estimate that spherical dust particles result in a lidar ratio 55–70 % lower than other spheroid shapes.

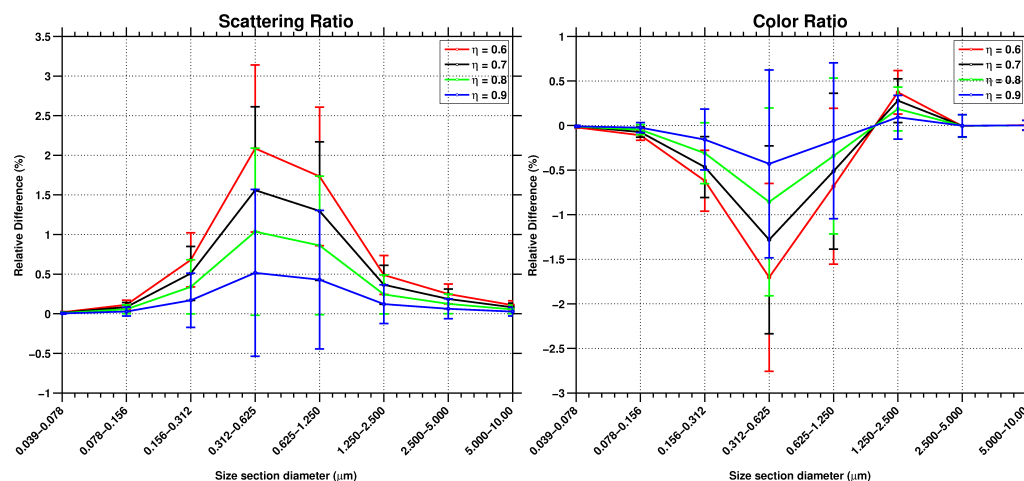
In order to estimate the variability of the simulated lidar parameters used here ( $R'$  and  $\chi'$ ), we have conducted a sensitivity test with different values of the backscattering phase function values ( $P_\pi$ ). Figure 7 shows that both  $R'(z)$  and  $\chi'$  are decreasing along with  $P_\pi$ . For example, a 50 % decrease in  $P_\pi$  results in a 36.16 % decrease for  $R'$  (in the 6th size section) and 45.31 % for  $\chi'$  (in the 7th size section). However, the exact uncertainty introduced because of the spherical shape approximation remains difficult to quantify since additional uncertainties are introduced by the variability in the chemical compositions, particle size distributions, and shape (e.g., aspect ratio) of dust particles. The use of randomly oriented spheroids is known (e.g. Dubovik et al., 2002b) to achieve higher accuracy. In order to better quantify the differences between spherical and non-spherical particles, a T-matrix calculation has to be used. As the development of OPTSIM is on going, the issue of non-sphericity will be addressed in the future versions.

## 4 Observations

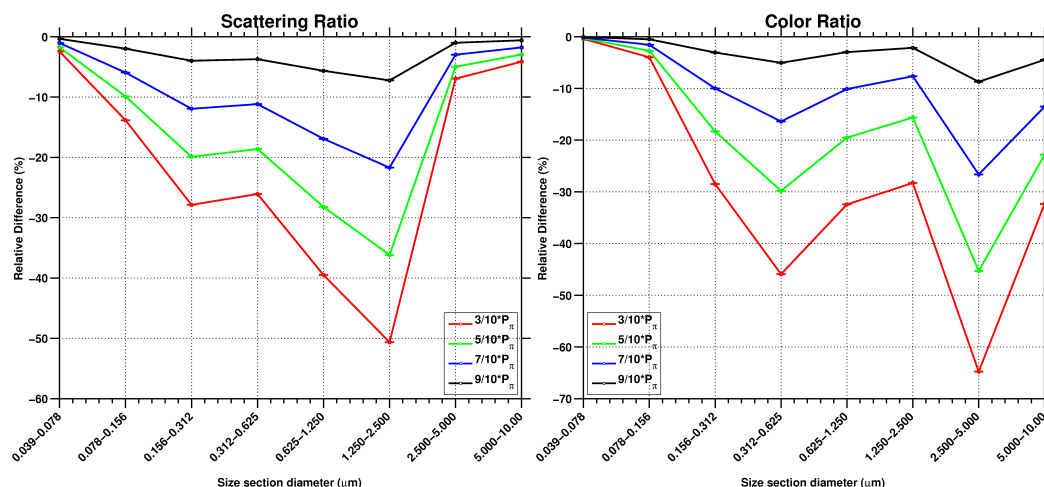
Our simulator allows the calculation of a series of optical properties that can be directly compared to observations. The optical thickness observed by passive remote sensors are widely used for the validation of aerosol modelling by CTMs. In the analysis presented in Sect. 6, we will present comparisons to AOD measurements as a first step of the evaluation, before detailing the additional information provided by lidar observations. In this section, the observations that have been used in the illustration are briefly described.

### 4.1 Aerosol optical thickness from passive remote sensing

The AERONET sun photometer network provides ground-based measurements of the AOD at several wavelengths and key aerosol properties (Angström exponent, size distributions, single scattering albedo, etc.) that have been used as a primary validation tool in the modelling community. Here,



**Fig. 6.** Differences in the simulated attenuated scattering ratio (left) and color ratio (right) per size section as a function of the backscattering phase function value.



**Fig. 7.** Differences in the simulated attenuated scattering ratio (left) and color ratio (right) per size section as a function of the multiple scattering parameter  $\eta'$ .

we use the level 2.0 cloud screened and quality-assured retrievals of the aerosol optical depth at 500 nm (with a fine and coarse mode separation) and Ångström's exponent (Holben et al., 1998; Dubovik and et al., 2000).

As a complement, the satellite retrievals of AOD from passive remote sensors are particularly well suited for the analysis of the temporal and horizontal distributions of aerosols since they provide measurements with global coverage every one or two days. Here, we use the MODIS/Aqua collection 5.1 level 2 data. The retrieved MODIS AOD ( $\tau$ ) is estimated to be accurate to  $\pm 0.05$  ( $\pm 0.15 \cdot \tau$ ) over the land and  $\pm 0.03$  ( $\pm 0.05 \cdot \tau$ ) over the ocean (Levy et al., 2010) and is known to correlate well with the AERONET sunphotometer measurements. (Bréon et al., 2011) report a correlation of 0.829/0.904 with a RMSD of 0.118/0.125 for the total

AOD at 500 nm over ocean/land and a slight positive bias ( $+0.02$ ). Aerosol products are provided at a spatial resolution of  $10 \text{ km} \times 10 \text{ km}$  ( $20 \times 20$  pixels of  $500 \text{ m} \times 500 \text{ m}$  resolution).

## 4.2 Lidar vertical profiles with CALIOP

The simulator can be used for the comparison of model outputs to surface or space-based lidar observations. Since the application examples are focused on satellite observations from the CALIPSO mission, it is here briefly introduced.

#### 4.2.1 CALIOP data characteristics

The CALIOP lidar is operating since April 2006 on board the sun-synchronous satellite CALIPSO as a part of the A-train constellation. It measures vertical backscatter profiles from aerosols and clouds at 532 nm and 1064 nm in the troposphere and lower stratosphere (Winker et al., 2009) with a nadir-viewing geometry (14-days revisit time). The L1 processing consists of three-dimensional geo-location followed by calibration (Powell and al., 2009).

The resulting Level 1B data (with a horizontal resolution of 333 m) contain Molecular Density (MD) profiles, profiles of total attenuated backscatter coefficient ( $\beta'$ ) at the two wavelengths and profiles of cross polarised attenuated backscatter ( $\beta'_{\text{perp}}$ ) at 532 nm. The vertical resolution of the 532 nm channel is altitude-dependent from 30 m (up to 8.2 km) to 1000 m  $\times$  60 m (8.2–20.2 km), while it is 1000 m  $\times$  60 m up to 20.2 km for the 1064 nm channel, with a total of 583 vertical levels distributed from the surface up to 40 km. The molecular density profile is derived from Goddard Modelling and Assimilation Office (GMAO) atmospheric profiles (Bey et al., 2001) for 33 vertical levels between the surface and 40 km.

Uncertainty sources on L1B data include possible calibration biases, lidar scattering signal noise (shot noise) and background noise (e.g. Winker et al., 2009; Powell and al., 2009). As the daytime measurements contain higher noise levels than night time measurements due to solar background signals (e.g. Hunt et al., 2009), we will limit our analyses to night-time observations only.

#### 4.2.2 Computation of the observed attenuated scattering ratio ( $R'_{\text{obs}}$ )

For this purpose, we compute the scattering ratio ( $R'$ ) following the same method as in (Chepfer et al., 2010). The basic methodology described in their Sect. 2.1 is reminded in the following.

First, the measured attenuated backscattered profile ( $\beta'$  over 583 vertical levels) and the MD profile (33 vertical levels) are each independently averaged or interpolated onto 80-level vertical levels (240 m thick), leading to the  $\beta'_{\text{vert}}$  and MD<sub>vert</sub> profiles. This averaging significantly increases the  $\beta'$  signal-to-noise ratio. The initial horizontal resolution (333 m) is kept in order to screen the small boundary layer clouds (next section).

To convert the MD profile into molecular profile  $\beta'_{\text{mol}}$ , the  $\beta'_{\text{vert}}$  and MD<sub>vert</sub> profiles are analysed and averaged in cloud-free portions of the stratosphere ( $22 < z < 25$  km for night time data). At these altitudes,  $\beta'_{\text{vert}}$  and MD<sub>vert</sub> profiles are each averaged horizontally over  $\pm 33$  profiles ( $\pm 10$  km) on both sides of a given profile.

The ratio between these two values ( $< \beta'_{\text{vert}} > / < \text{MD}_{\text{vert}} >$ ) is then used to scale the MD<sub>vert</sub> profile into an attenuated backscatter molecular signal profile ( $\beta'_{\text{vert,mol}}$ ). The

latter is the  $\beta'_{\text{mol}}$  profile that would be measured in the absence of clouds and aerosols in the atmosphere. The measured lidar attenuated scattering ratio profile ( $R'_{\text{obs}}$ ) is then computed by dividing the  $\beta'_{\text{vert}}$  profile by the  $\beta'_{\text{vert,mol}}$  profile. Its horizontal resolution is 330 m and the vertical resolution is 240 m.

Pixels located below and at the surface level are rejected by using the “altitude-elevation” flag from level 1 CALIOP data.

#### 4.2.3 Cloud screening in the observations

Clouds dominate the received signal and as a result the contribution of aerosols is undermined in cloudy situations. Since we are primarily interested in aerosols, a cloud filter will be used to eliminate cloud-contaminated profiles. Boundary layer clouds can have a small horizontal extension, even lower than 1 km (e.g. Medeiros et al., 2010; Koren et al., 2008; Konsta et al., 2012). For this reason, we need to use high horizontal resolution  $R'$  profiles for cloud detection.

The threshold on  $R'$  used to detect clouds (or aerosols) is altitude and resolution dependent, due to the nature of the noise imposed on the lidar backscatter signal. It presents lower values in regions of (relatively) high clear air SNR, and higher threshold values in low clear air SNR (e.g., high altitude) regions. Here the lidar profile is considered to be cloud-contaminated when  $R' \geq 7.5$  is detected in a 3-profiles running average (1 km, used to reduce noise level). This threshold value ( $R' = 7.5$ ) has been adjusted based on sensitivity studies (not shown) using lidar profiles at the resolution used here (240 m vertical and 330 m horizontal, as in Chepfer et al., 2010).

For optically thick clouds (typically with optical depth larger than 3), the lidar signal is fully attenuated below the cloud, and the pixels located below cloud are filtered out. For high altitude clouds with moderate optical depth ( $< 3$ , typically cirrus clouds), the lidar signal is attenuated in the observations ( $R'$  can be lower than 1) below the cloud, but above the top model level depending on the model's configuration. This attenuation will then not be accounted for in the model, and an artificial bias may occur between modelled and observed  $R'$ . To avoid this problem, the observed  $R'$  is forced to 1 at the top model boundary. The required scaling factor is applied to the whole profile. Otherwise, only the peak at the cloud location is removed.

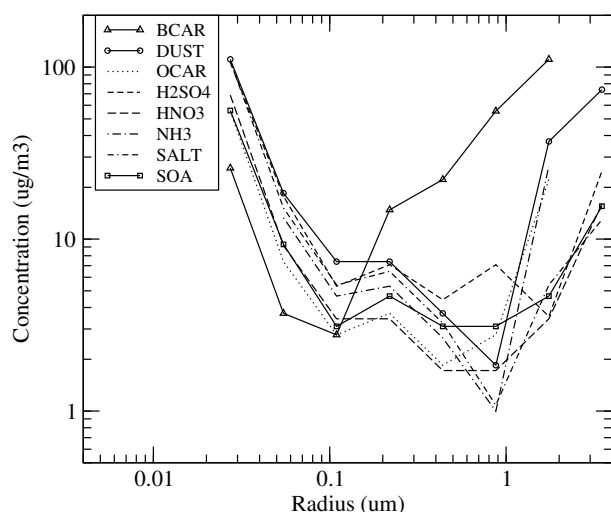
Finally, the cloud-free data are averaged at the model's horizontal and vertical resolutions for direct comparison to the simulated  $R'$  profiles.

#### 4.2.4 Aerosol detection limits

The nighttime aerosol detection threshold used here is  $R' = 1.2$  for the 532 nm channel (Chepfer et al., 2012). Using this threshold value (which is considered to be an upper limit, since we are averaging profiles), a theoretical calculation of

**Table 3.** List of species accounted for by the CHIMERE optical module, wavelength-dependent complex refractive index and density of each aerosol species. All refractive indices and density values are taken from the ADIENT/APPRAISE technical report (<http://www.met.reading.ac.uk/adiant/>).

Species	Model	Refractive index	
		532 nm	1064 nm
Organic carbon	OCAR	$1.63\text{--}2.32 \times 10^{-2}i$	$1.63\text{--}7.0 \times 10^{-4}i$
Black carbon	BCAR	$1.85\text{--}7.10 \times 10^{-1}i$	$1.85\text{--}7.10 \times 10^{-1}i$
Mineral dust	DUST	$1.53\text{--}1.20 \times 10^{-3}i$	$1.53\text{--}7.74 \times 10^{-4}i$
Secondary organic aerosols	SOA	$1.56\text{--}3.0 \times 10^{-3}i$	$1.56\text{--}3.0 \times 10^{-3}i$
Equivalent sulfate	H2SO4	$1.44\text{--}1.0 \times 10^{-8}i$	$1.42\text{--}1.64 \times 10^{-6}i$
Equivalent nitrate	HNO3	$1.61\text{--}0i$	$1.59\text{--}1.8 \times 10^{-5}i$
Equivalent ammonium	NH3	$1.53\text{--}1.0 \times 10^{-7}i$	$1.51\text{--}2.35 \times 10^{-6}i$
Sea salt	SALT	$1.50\text{--}1.20 \times 10^{-8}i$	$1.47\text{--}1.97 \times 10^{-4}i$
Water*	H2O	$1.333\text{--}1.9 \times 10^{-9}i$	$1.326\text{--}4.18 \times 10^{-6}i$



**Fig. 8.** Theoretical minimum detectable concentration ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) per size section corresponding to  $R' \geq 1.2$  (CALIOP night-time threshold) for each of the aerosol species considered by the model. Concentrations are considered at altitudes between  $\sim 700$  and  $\sim 1200$  m.

the minimum detectable concentration per species (one at a time) and size section was conducted. The corresponding results are shown in Fig. 8. We notice that a crucial parameter in determining these values, is the size and number concentration of the particles, as explained in Sect. 3.1.1.

The minimum detectable concentration for each species using a typical size distribution for urban, suburban and rural areas, is also calculated. In general, for concentrations in the lower troposphere (cf. Sect. 3.1) the median for the minimum detectable concentration for all species considered is between  $\sim 2.4$  and  $\sim 5.5 \mu\text{g m}^{-3}$  (BC 4.7, OC 3.8, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 5.5, HNO<sub>3</sub> 2.4, NH<sub>3</sub> 3.4, SALT 3.3 and SOA  $3.2 \mu\text{g m}^{-3}$ ). The highest concentration value is observed for mineral dust (me-

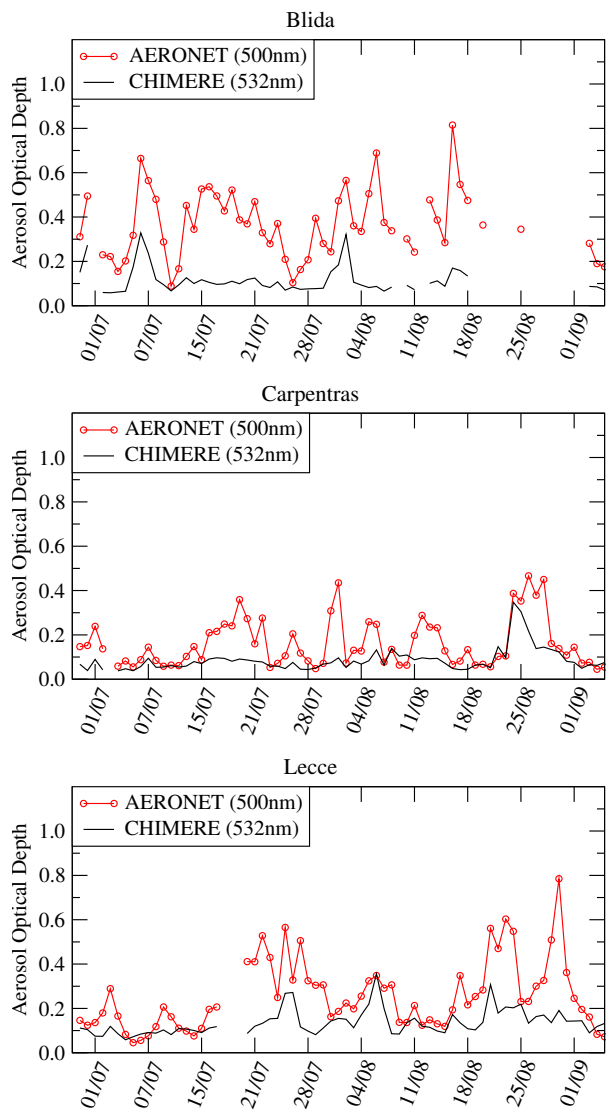
dian  $11.3 \mu\text{g m}^{-3}$ ). Comparing with orders of magnitudes observed in different locations in Europe (Putaud et al., 2010), these limits of detection will be generally exceeded in polluted conditions (urban), but they are below or close to the limits in rural and suburban sites.

## 5 Meteorology and chemistry transport modelling

For this study, we use the offline chemistry transport model CHIMERE (version 2011b), coupled with the mesoscale model Weather Research and Forecasting (WRF) in its 3.2.1 version and in its non-hydrostatic configuration. We use the same model configuration as in studies such as Rouil et al. (2009) and Bessagnet et al. (2010). Both meteorology and chemical concentrations results are obtained with an hourly frequency. A detailed documentation of the physical and chemical parameterisations used in CHIMERE is available online <http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/>. Regarding particulate matter, an extensive evaluation of the model at a regional scale can be found in (Vautard et al., 2007) and (Bessagnet et al., 2008). The aerosols species considered by the model are sulphates, nitrates, ammonium, organic aerosols and sea-salt. For a detailed description of the aerosol module in CHIMERE, the reader is referred to (Bessagnet et al., 2004).

The surface emissions account for anthropogenic, biogenic, mineral dust and fires sources. The anthropogenic emissions preprocessing is described in (Menut et al., 2012). The MEGAN model (Guenther et al., 2006) is used for the biogenic emissions while the mineral dust emissions are described in (Menut, 2008).

Two nested domains are defined in order to model the synoptic scale over a large African-Euro-Mediterranean domain and the local scale with an included Euro-Mediterranean domain. In this study, the results are presented only for the smallest domain (from  $4^\circ$  W to  $34^\circ$  E and from  $24.7^\circ$  N to

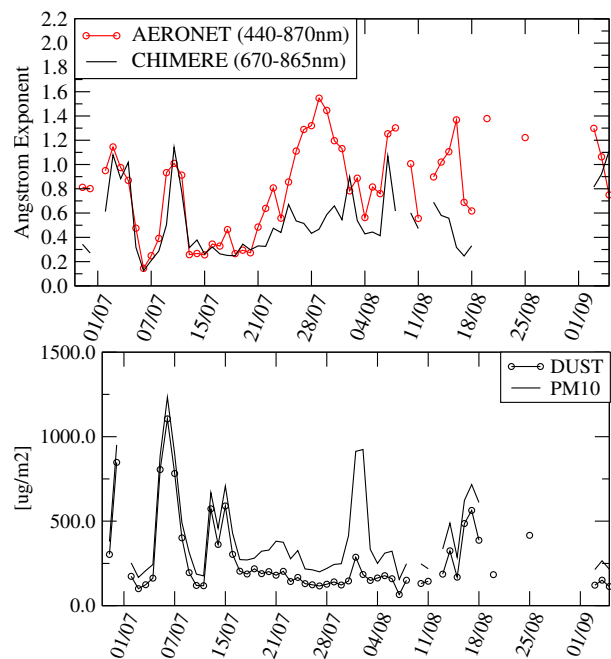


**Fig. 9.** Temporal evolution of the daily mean AOD (500 nm) by AERONET (red line) and the corresponding CHIMERE AOD (at 532 nm, black line) at three AERONET sites (Blida, Carpentras, Lecce).

45.4° N), with a horizontal resolution of 20 km. The vertical grid contains 18 uneven layers starting from the surface pressure level and reaching 200 hPa. Finally, this simulation covers the time interval 29th June – 6th September 2007.

## 6 Analysis of dust events in the Euro-Mediterranean area during the summer 2007

Mineral dust is well known to contribute to atmospheric pollution in urban areas in addition to local anthropogenic pollutants over the Euro-Mediterranean region (e.g., Bessagnet et al., 2008; Querol et al., 2009). Transported mainly from the Sahara desert (Laurent et al., 2008), it often results in an ex-



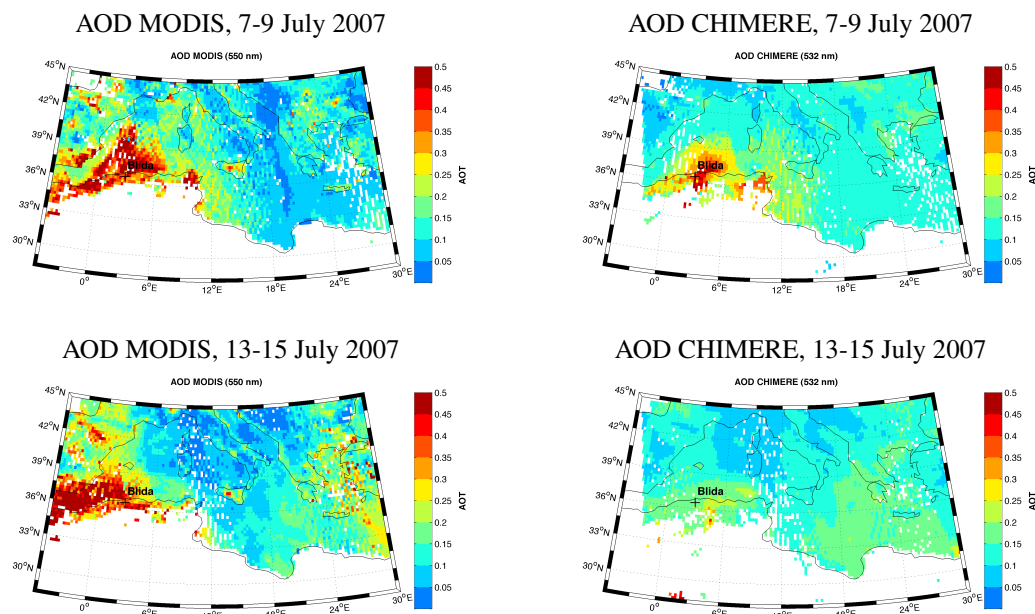
**Fig. 10.** Temporal evolution of the daily mean and Angström exponent (440–870 nm) for the AERONET station in Blida (2.88° E, 36.5° N) between 29 June and 6 September 2007 and the corresponding CHIMERE Angström exponent (at 670–865 nm, red line). The daily mean (for the same hours as the measurements) dust and  $\text{PM}_{10}$  concentration is shown in the bottom figure.

ceedance of the air quality thresholds in the most concerned countries like Spain (e.g. Escudero et al., 2007), Italy (e.g. Gobbi et al., 2007) or Greece (e.g. Kaskaoutis et al., 2008).

### 6.1 Comparisons to AERONET and MODIS AOD

The dust episodes analysed took place near the AERONET station in Blida (Algeria). The model shows large increase in dust load for the two events, corresponding to transport from emissions in the Algerian part of the Sahara desert.

The general situation during the summer 2007 was first analysed using comparisons between the CHIMERE simulation and retrievals from the AERONET network for the total AOD at 500 nm. Figure 9 shows the results at several observation sites around the Mediterranean Basin. The agreement for background AOD levels is satisfying and most events are captured in the Carpentras and Lecce sites (correlations of 63 % and 56 %, respectively). However, the magnitude of the observed AOD peaks is generally underestimated. These scores are in consistency with current air quality models performances (e.g. Stern et al., 2008). The highest AOD values are observed at the Blida site (North of Algeria), which is particularly well-suited for the analysis of dust impact in the Euro-Mediterranean region since it is located within the Northern Saharan domain. The correlation



**Fig. 11.** Maps of mean AOD by MODIS (550 nm) and CHIMERE (532 nm) during the 7–9 and 13–15 July 2007 dust events. MODIS data are re-gridded to the resolution of the model.

between model and observations is 58 %, the bias (model–observation) is  $-0.25$  with a RSME 0.28 for the AOD (500 nm). The Angström exponent at 440–870 nm and the contribution of dust to the total aerosol load in the model simulation is shown in Fig. 10. Several major dust events were detected, with large AOD and low Angström exponent values (desert dust aerosols are characterised by low  $\alpha$  values, ranging generally from  $\sim 1.2$  down to  $\sim -0.1$  (e.g. Dubovik et al., 2002a). The very good agreement between the model and AERONET for the low values of the Angström exponent suggests that the average size of aerosols is correctly simulated for the dust events, but the peak AOD values in the observations are generally underestimated in the model.

The MODIS AOD and corresponding CHIMERE AOD are shown in Fig. 11. According to the observations, both events were characterised by intense dust emissions, covering the west-northern part of Africa and resulting in AOD (at 550 nm) values up to 0.93 while a large plume was observed moving northeastward over the Mediterranean Basin. The comparisons for the 7–9 July 2007 time period show that the localisation and the simulated transport of the plume is consistent with the observations. However, its intensity and extent are underestimated, indicating a negative bias in the emissions and/or a transport error. Regarding the second event, a small, very local dust plume is simulated while its intensity and extent are missed.

We have chosen to analyse more specifically two events, for which CALIOP measurements are also available (see following section): 7–9 July 2007 (well captured in the sim-

ulation) and 13–15 July 2007 (underestimated). The model shows large increase in dust load for the two events, corresponding to transport from emissions in the Algerian part of the Sahara desert. However, it is significantly lower for the 13–15 July 2007 event than for the 7–9 July 2007 event. The transport pathways for the 2nd event show that the bulk of the dust plume is located to the east of the AERONET station in Blida. The strong underestimation may, thus, result from underestimating emissions as well as from an error in estimated transport.

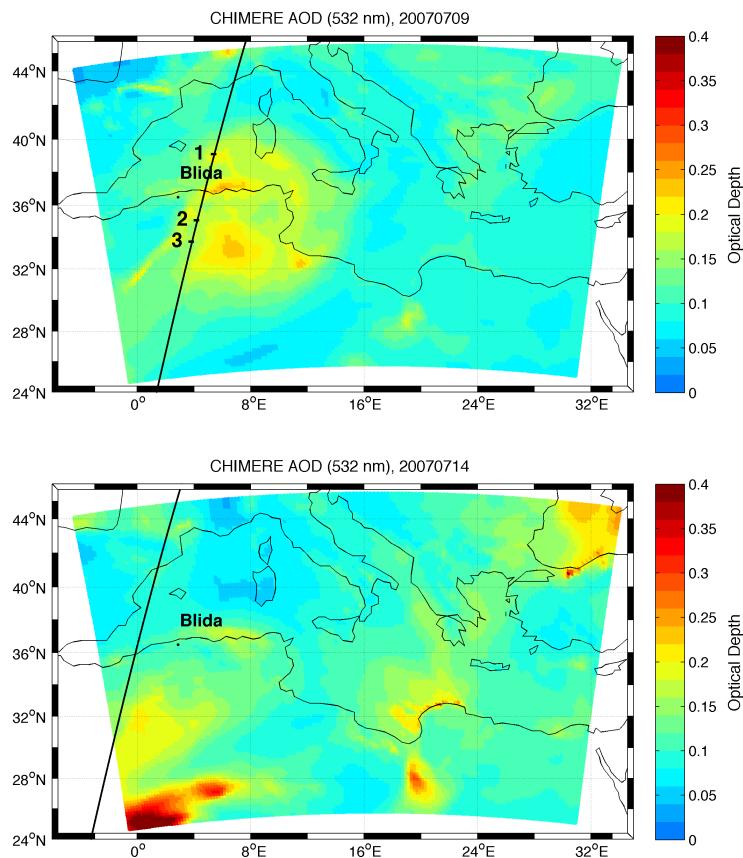
## 6.2 Comparisons to CALIOP observations

For each of the events presented in the previous section, the corresponding CALIPSO orbit is plotted in Fig. 12 along with the corresponding AOD (for  $\lambda = 532$  nm) simulated by OPTSIM.

Comparisons between the CHIMERE simulations and the L2 observations are first presented, as it is the approach classically used by modellers. We then discuss in more detail what can be learned from the comparisons to L1 observations, also allowed by OPTSIM.

### 6.2.1 Comparisons to CALIOP extinction and backscatter coefficients

The observed L2 extinction and backscatter coefficients, and the corresponding CHIMERE simulations for the 7–9 July event are shown in Fig. 13. An aerosol layer can be clearly seen in both figures across the orbit portion. The maximum



**Fig. 12.** Aerosol Optical Depth modelled with CHIMERE for  $\lambda = 532\text{nm}$  for the 9 and 14 July 2007 at the same hour as the CALIPSO overpass time.

for both coefficients is located above the continent around  $35^\circ\text{N}$  near the Blida station, while the plume is extending towards the sea. Vertically it is located between  $\sim 1.5$  to  $\sim 4.5$  km. In CHIMERE, an aerosol layer is simulated in the same area, but both coefficients are strongly underestimated. The extinction coefficient underestimation is notably larger. This could be explained by the aerosol type identification in the CALIPSO classification algorithm. Indeed a large fraction of the observed dust layer is identified as polluted dust. On the other hand, CHIMERE is simulating mainly dust in this area. The exact contribution of dust to the simulated lidar signal is discussed in the following section.

### 6.2.2 Comparisons to CALIOP scattering and color ratios

The corresponding L1 parameters ( $R'$  and  $\chi'$ ) are presented in Figs. 14 and 15. In consistency with the L2 products, the CALIOP  $R'$  observations show an aerosol layer around  $35^\circ\text{N}$  near the Blida station. Vertically it is extending from  $\sim 3$  to  $\sim 4.5$  km ( $\sim 2.5$  km large), and above the sea in the north-eastward direction at  $\sim 1$  to 3 km altitude. For this event, the general structure of the plume is well reproduced in the

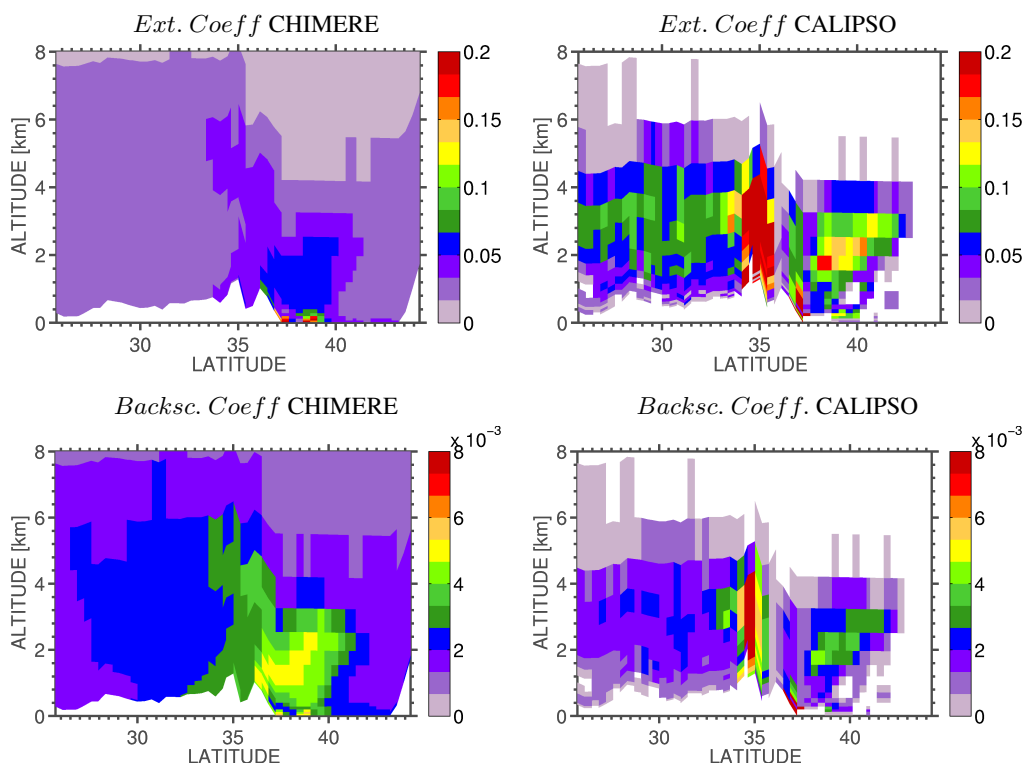
CHIMERE simulation. However, its vertical extent is overestimated.

We also notice that the thickness of the aerosol layer appears diminished in comparison with the L2 observations. This can be explained by the impact of extinction to  $\beta'$ , which results in a smaller attenuated scattering ratio. In agreement with the observations, the same behaviour is observed in the simulated  $R'$ .

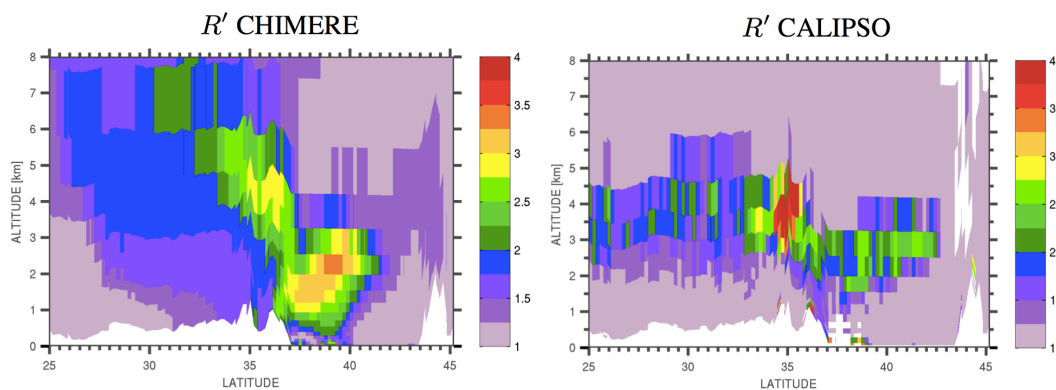
Three individual  $R'$  profiles are presented in Fig. 17: one corresponding to the maximum observed  $R'$  ( $35.19^\circ\text{N}$ ); the second located over the sea ( $39.23^\circ\text{N}$ ); the third ( $33.91^\circ\text{N}$ ) closer to the area of the dust emissions. They correspond to points 1, 2, 3 in Fig. 12. According to CHIMERE, the dominant species in both cases is dust (97.3 % and 93.5 %) although in the second profile (over the sea) we see a higher contribution of sea salt above the surface level (3.5 %). For the entire portion of the orbit within the simulated domain, the mean altitude of the maximum simulated  $R'$  is 4.51 km against 2.93 km for CALIPSO, with a RSME of 2.53 km and a correlation 0.45.

The model  $R'$  value is underestimated near the observed peak and overestimated over the Mediterranean sea. This





**Fig. 13.** Extinction ( $\text{km}^{-1}$ ) and backscatter ( $\text{km}^{-1} \text{sr}^{-1}$ ) coefficient by CHIMERE (left) and CALIOP (right) for the nighttime portion of the orbit of the 9 July 2007. The CALIOP data are averaged into the model's horizontal and vertical resolutions for comparison to the simulated profiles.



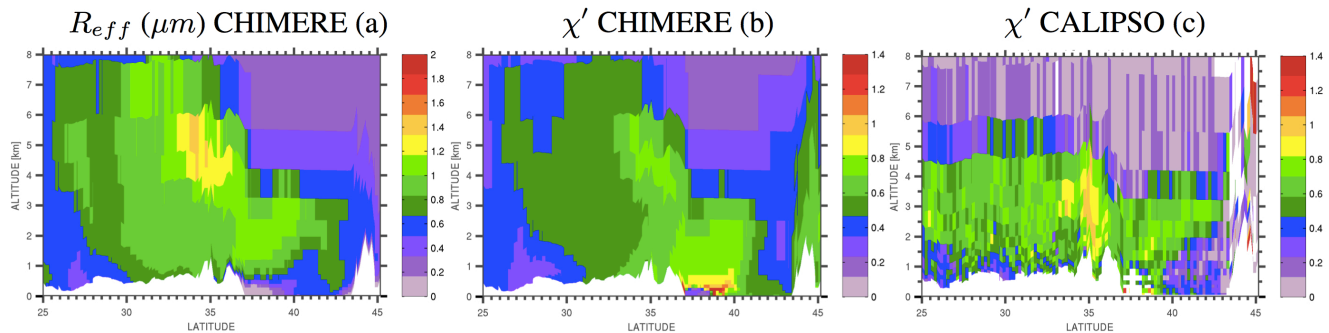
**Fig. 14.** Attenuated Scattering Ratio by CHIMERE (left) and CALIOP (right) for the nighttime portion of the orbit of the 9 July 2007. The initial profiles corresponding to cloud contaminated data are filtered out. The cloud-free data are averaged into the model's horizontal and vertical resolutions for comparison to the simulated  $R'(z)$  profiles.

may be related to a slight temporal shift in the emissions and/or transport. The average maximum simulated  $R'$  presents a correlation of 0.6 with the observed  $R'$ , a mean bias of 1.12 and a RSME of 0.68.

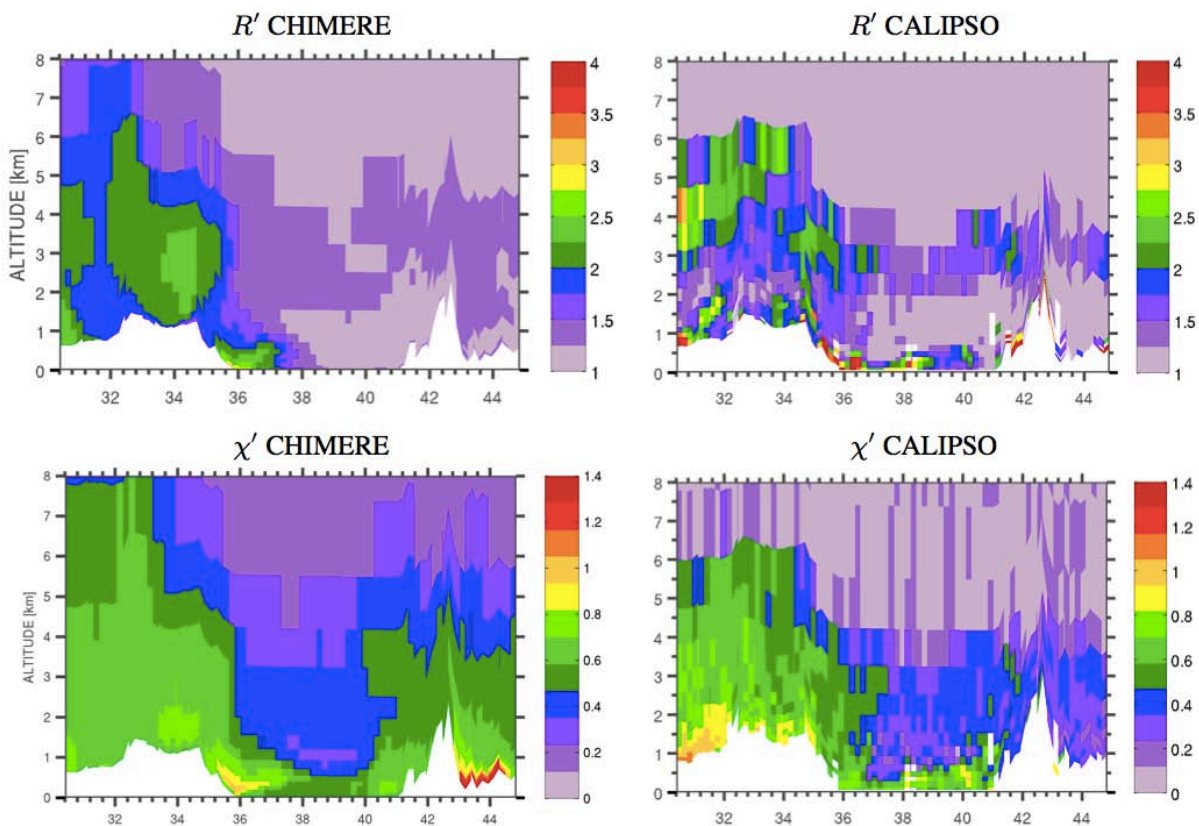
For the 14 July 2007, the simulated  $R'$  show enhancements around 3–4 km high above the southern portion of the orbit, which is consistent with the large plume observed at 4 km.

Here again, the model strongly underestimates  $R'$  and overestimates the vertical extent of the plume.

For the two time periods, the color ratios (Fig. 15 and 16) are underestimated in the model. Examining the first event, the corresponding simulated effective radius ( $R_{\text{eff}}$ ) also shown in Fig. 15 presents a maximum ( $\sim 1.2\text{--}1.3 \mu\text{m}$ ) near the observed  $\chi'$  peak, but at a higher altitude. As seen



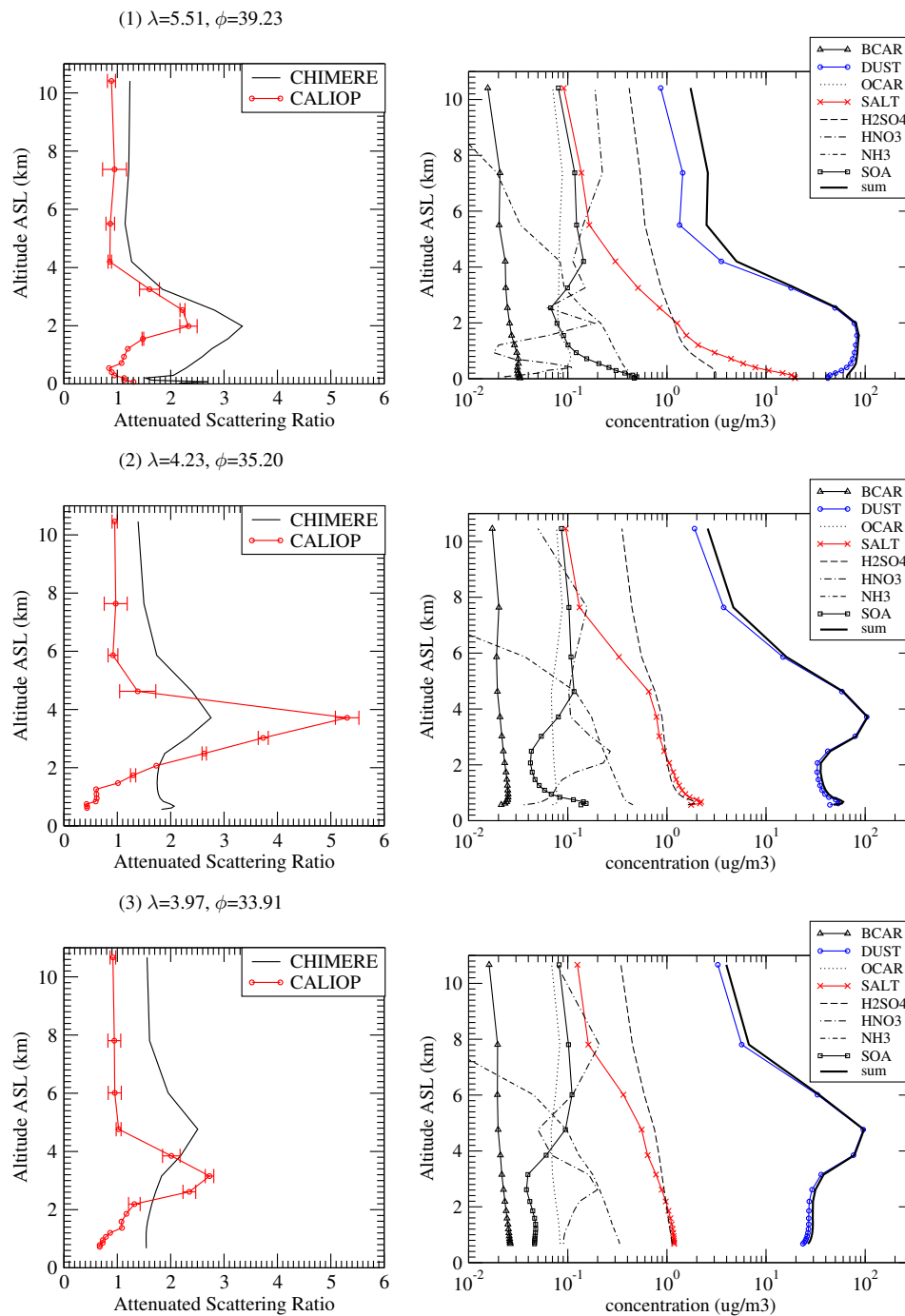
**Fig. 15.** Effective Radius and Color Ratio by CHIMERE (a, b) and Color Ratio CALIOP (c) for the nighttime portion of the orbit of the 9 July 2007. The initial profiles corresponding to cloud contaminated data are filtered out. The cloud-free data are averaged into the model's horizontal and vertical resolutions for comparison to the simulated  $R'(z)$  profiles.



**Fig. 16.** Same as Fig. 14, but for the nighttime portion of the orbit of the 14 July 2007.

in Fig. 17, it corresponds mostly to dust particles. However,  $R_{\text{eff}}$  provides information on the mean size of particles while  $\chi'$  strongly depends on the size distribution (cf. Fig. 5). For instance, higher  $R_{\text{eff}}$  values may be associated with lower  $\chi'$  values (e.g.,  $\sim 35^\circ$  N compared to  $\sim 39^\circ$  N values) when the concentration in smaller size sections is higher. More specifically, around  $\sim 35^\circ$  N at the same altitude as the  $R_{\text{eff}}$  peak, the simulated size distribution is dominated by the 8th size section. By inverting the concentration between the 8th and

the 7th, so that the total concentration remains unaltered, we noticed an increase of 63.6 % in  $\chi'$  along with a 8.4 % decrease in  $R_{\text{eff}}$ . This suggests that although the mean size of the particles and their localisation may well be represented in the model (consistent with the Angström exponent comparisons), a revision of the dust size distribution would be beneficial for the  $\chi'$  comparisons.



**Fig. 17.** Scattering Ratio profiles by CALIOP and CHIMERE (**left**) for the nighttime portion of the orbit the 9 July 2007 and the corresponding CHIMERE concentration profiles per species (**right**).

The possible missing aerosol sources in the model (cf. Sect. 6.2.1) could also be a cause of discrepancy between the simulated and the observed color ratio.

The main discrepancy in the simulated transport is the vertical extent of the plume. This overestimation in CHIMERE

may be due to the chosen vertical resolution, which decreases to  $\sim 1$  km in the free troposphere. The comparisons suggest a need for a higher vertical resolution, in order to achieve a better accuracy in terms of layer thickness, which could be

beneficial to the model's ability to reproduce transport and vertical mixing of atmospheric constituents.

But the vertical diffusion parametrisation in the model may also cause too large transport towards higher altitudes. The  $R'$  underestimation for the profile closest to the emissions area may be attributed to an underestimation of the dust emissions as we have also seen in the AOD comparisons.

The general features highlighted using comparisons to L1 observations are in consistency with the L2 comparisons. However, in this case, we rely directly on the observed quantity and we do not need to go back to any retrieval classification or assumption.

## 7 Conclusions

In this paper, we presented the OPTSIM post-processing tool, designed for a complete comparison of aerosol concentration distributions calculated by chemistry transport models (CTM) to passive and active remote-sensing observations. By simulating the aerosol optical properties and column integrated parameters (e.g., AOD, Angström exp.) it allows an evaluation of the horizontal and temporal distributions of aerosol compared to passive remote-sensing observations. Furthermore, by simulating lidar attenuated backscattered profiles, the aerosol vertical structures in the model simulations can be directly compared to calibrated Level 1B CALIOP observations. Therefore, it allows additionally, an evaluation of the vertical structure of aerosols and, as a result, the evaluation of the vertical mixing and transport parametrisation in the model. Finally, by simulating color ratio profiles, it can identify problems related to the mean size and the modelled size distribution of aerosols ratio while the contribution of each species to the simulated lidar signal can also be quantified and, therefore, can be used for the study of specific pollution events.

The methodology used and the requirements of the OPTSIM tool in terms of model output configuration are first described. The validation of the simulator's self-consistency is then demonstrated on an academic case study. For two different species (black carbon and dust), the main steps of the calculation from simulated concentration profiles are detailed: optical depth, attenuated backscattered profile, and finally attenuated scattering ratio and color ratio profiles.

An application of this tool is presented for the evaluation of the simulation by the CHIMERE CTM of two specific dust events that took place in the Northwestern African region during July 2007. Firstly, an analysis of these events is conducted based on comparisons to the AERONET and MODIS passive observations only. Then a comparison of the simulated lidar profiles with CALIOP L1 and L2 observations is undertaken. Since we are focusing only on aerosol plumes, the data have to be cloud-filtered before they are averaged on the same horizontal and vertical grid as the model for comparison. The general structure of the dust plume is well-simulated while the intensity of the examined events appears

underestimated. The model appears positively biased regarding the thickness and the altitude of the plume, especially near the emissions area. An assumption of a slight temporal shift in the emissions and/or transport can also be made from the underestimated  $R'$  values near the observed peak and overestimated values over the Mediterranean sea. These discrepancies may be partly attributed to the vertical mixing parametrization which may have to be revised with the addition of finer altitude layers.

This work shows the additional information that can be expected from the use of lidar observation for the analysis of long-range transport events. However, due to their limited horizontal coverage, the complementary use of passive remote-sensing observations is necessary for further validation of the emissions and horizontal transport pathways.

The OPTSIM tool described in this paper could be also used as an observation operator in data assimilation studies, coupled with a cloud signal/noise simulator. Furthermore, it is designed to be model independent and can be adapted for other CTMs. It can be provided upon request to any interested user.

**Acknowledgements.** The authors are grateful to the French ICARE database (<http://www.icare.univ-lille1.fr/>) for providing the MODIS and CALIPSO data. The MODIS and CALIPSO project and science teams are greatly acknowledged for data availability as well as CLIMSERV/CGTD for providing access to the Level 1 CALIPSO dataset. We also thank D. Winker, for helpful comments. The authors acknowledge the Centre National des Etudes Spatiales (CNES, France) for financial support. S. Stromatas is supported by a fellowship from the CNES and the Agence de l'Environnement et de la Maitrise de l'Energie (ADEME, France).

Edited by: V. Grewe



The publication of this article is financed by CNRS-INSU.

## References

- Andreae, M. O. and Merlet, P.: Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, *Global Biogeochem. Cy.*, 15, 995–966, 2001.
- Bessagnet, B., Hodzic, A., Vautard, R., Beekmann, M., Cheinet, S., Honore, C., Lioussé, C., and Rouil, L.: Aerosol modelling with CHIMERE – preliminary evaluation at the continental scale, *Atmos. Environ.*, 38, 2803–2817, 2004.
- Bessagnet, B., Menut, L., Aymoz, G., Chepfer, H., and Vautard, R.: Modeling dust emissions and transport within Europe:

- the Ukraine March 2007 event, *J. Geophys. Res.*, 113, D15202, doi:10.1029/2007JD009541, 2008.
- Bessagnet, B., Menut, L., Curci, G., Hodzic, A., Guillaume, B., Liousse, C., Moukhtar, S., Pun, B., Seigneur, C., and Schulz, M.: Regional modelling of carbonaceous aerosols over Europe – focus on secondary organic aerosols, *J. Atmos. Chem.*, 61, 175–202, 2009.
- Bessagnet, B., Seigneur, C., and Menut, L.: Impact of dry deposition of semi-volatile organic compounds on secondary organic aerosols, *Atmos. Environ.*, 44, 1781–1787, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.01.027, 2010.
- Bey, I., Jacob, D. J., Yantosca, R. M., Logan, J. A., Field, B. D., Fiore, A. M., Li, Q., Liu, H. Y., Mickley, L. J., and Schultz, M. G.: Global modelling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation *J. Geophys. Res.*, 106, 23073–23096, doi:10.1029/2001JD000807, 2001.
- Bréon, F., Vermeulen, A., and Descloitres, J.: An evaluation of satellite aerosol products against sunphotometer measurements, *Remote Sens. Environ.*, 115, 3102–3111, 2011.
- Chen, F. and Dudhia, J.: Coupling an advanced land surface-hydrology model with the Penn State-NCAR MM5 modelling system. Part I: model implementation and sensitivity, *Mon. Weather Rev.*, 129, 569–585, 2001.
- Chepfer, H., Bony, S., Winker, D., Chiriaco, M., Dufresne, J., and Sèze, G.: Use of CALIPSO lidar observations to evaluate the cloudiness simulated by a climate model, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L15704, doi:10.1029/2008GL034207, 2008.
- Chepfer, H., Bony, S., Winker, D., Cesana, G., Dufresne, J. L., Minnis, P., Stubenrauch, C. J., and Zeng, S.: The GCM Oriented CALIPSO Cloud Product (CALIPSO-GOCCP), *J. Geophys. Res.*, 115, D00H16, doi:10.1029/2009JD012251, 2010.
- Chepfer, H., Cesana, G., Winker, D., Getzewich, B., and Vaughan, M.: Comparison of two different cloud climatologies derived from CALIOP Level 1 observations: the CALIPSO-ST and the CALIPSO-GOCCP, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 10.1175/JTECH-D-12-00057.1, 2012.
- Collins, R. T. H. and Russell, P. B.: Lidar measurement of particles and gases by elastic backscattering and differential absorption, *Top. Appl. Phys.*, 14, 71–151, 1976.
- de Rooij, W. A. and van der Stap, C. C. A. H.: Expansion of Mie scattering matrices in generalized spherical functions, *Astron. Astrophys.*, 131, 237–248, 1984.
- de Villiers, R. A., Ancellet, G., Pelon, J., Quennehen, B., Schwarzenboeck, A., Gayet, J. F., and Law, K. S.: Airborne measurements of aerosol optical properties related to early spring transport of mid-latitude sources into the Arctic, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 5011–5030, doi:10.5194/acp-10-5011-2010, 2010.
- Dubovik, O. and King, M.: A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105, 20673–20696, 2000.
- Dubovik, O., Smirnov, A., Holben, B. N., King, M. D., Kaufman, Y. J., Eck, T. F., and Slutsker, I.: Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from Aerosol Robotic Network (AERONET) sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105, 9791–9806, 2000.
- Dubovik, O., Holben, B. N., Eck, T., Smirnov, A., Kaufman, Y. J., King, M. D., Tanré, D., and Slutsker, I.: Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations, *J. Atmos. Sci.*, 59, 590–608, 2002a.
- Dubovik, O., Holben, B. N., Lapyonok, T., Sinyuk, A., Mishchenko, M. I., Yang, P., and Slutsker, I.: Non-spherical aerosol retrieval method employing light scattering by spheroids, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 1415, doi:10.1029/2001GL014506, 2002b.
- Dubovik, O., Lapyonok, T., Kaufman, Y. J., Chin, M., Ginoux, P., Kahn, R. A., and Sinyuk, A.: Retrieving global aerosol sources from satellites using inverse modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 209–250, doi:10.5194/acp-8-209-2008, 2008.
- Escudero, M., Querol, X., Avila, A., and Cuevas, E.: Origin of the exceedances of the European daily PM limit value in regional background areas of Spain, *Atmos. Environ.*, 41, 730–744, 2007.
- Ford, B. and Heald, C. L.: An A-Train and model perspective on the vertical distribution of aerosols and CO in the Northern Hemisphere, *J. Geophys. Res.*, 117, D06211, doi:10.1029/2011JD016977, 2012.
- Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Berntsen, T., Betts, R., Fahey, D., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D., Myhre, G., Nganga, J., Prinn, R., Raga, G., Schulz, M., and Dorland, R. V.: Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing, in: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, edited by: Solomon, S., Qin, D., Manning, M., Chen, Z., Marquis, M., Averyt, K. B., Tignor, M., and Miller, H. L., Cambridge University Press, Cambridge, UK and New York, NY, USA, 2007.
- Gasteiger, J., Wiegner, M., Groß, S., Freudenthaler, V., Toledano, C., Tesche, M., and Kandler, K.: Modelling lidar-relevant optical properties of complex mineral dust aerosols, *Tellus B*, 63, 725–741, doi:10.1111/j.1600-0889.2011.00559.x, 2011.
- Generoso, S., Bey, I., Labonne, M., and Bréon, F. M.: Aerosol vertical distribution in dust outflow over the Atlantic: comparisons between GEOS-Chem and Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation (CALIPSO), *J. Geophys. Res.*, 113, D24209, doi:10.1029/2008JD010154, 2008.
- Gobbi, G., Barnaba, F., and Ammannat, L.: Estimating the impact of Saharan dust on the year 2001 PM<sub>10</sub> record of Rome, Italy, *Atmos. Environ.*, 41, 261–275, 2007.
- Gordon, H.: Atmospheric correction of ocean color imagery in the Earth Observing System era, *J. Geophys. Res.*, 102, 17081–17106, 1997.
- Grell, G. A. and Devenyi, D.: A generalized approach to parameterizing convection combining ensemble and data assimilation techniques, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 1693, doi:10.1029/2002GL015311, 2002.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P. I., and Geron, C.: Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3181–3210, doi:10.5194/acp-6-3181-2006, 2006.
- Hallquist, M., Wenger, J. C., Baltensperger, U., Rudich, Y., Simpson, D., Claeys, M., Dommen, J., Donahue, N. M., George, C., Goldstein, A. H., Hamilton, J. F., Herrmann, H., Hoffmann, T., Iinuma, Y., Jang, M., Jenkin, M. E., Jimenez, J. L., Kiendler-Scharr, A., Maenhaut, W., McFiggans, G., Mentel, Th. F., Monod, A., Prévôt, A. S. H., Seinfeld, J. H., Surratt, J. D., Szmigielski, R., and Wildt, J.: The formation, properties and impact of secondary organic aerosol: current and emerging issues, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5155–5236, doi:10.5194/acp-9-5155-

- 2009, 2009.
- Hänel, G.: The properties of atmospheric particles as functions of the relative humidity at thermodynamic equilibrium with surrounding moist air, *Adv. Geophys.*, 19, 73–188, 1976.
- Heald, C., Ridley, D., Kreidenweis, S., and Drury, E. E.: Satellite observations cap the atmospheric organic aerosol budget, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L24808, doi:10.1029/2010GL045095, 2010.
- Hodzic, A., Chepfer, H., Vautard, R., Chazette, P., Beekmann, M., Bessagnet, B., Chatenet, B., Cuesta, J., Drobinski, P., Goloub, P., Haeffelin, M., and Morille, Y.: Comparison of aerosol chemistry transport model simulations with lidar and sun photometer observations at a site near Paris, *J. Geophys. Res.*, 109, D23201, doi:10.1029/2004JD004735, 2004.
- Hodzic, A., Madronich, S., Bohn, B., Massie, S., Menut, L., and Wiedinmyer, C.: Wildfire particulate matter in Europe during summer 2003: meso-scale modelling of smoke emissions, transport and radiative effects, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4043–4064, doi:10.5194/acp-7-4043-2007, 2007.
- Holben, B., Eck, T., Slutsker, I., Tanré, D., Buis, J., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J., Kaufman, Y., Nakajima, T., Lavenu, F., Jankowiak, I., and Smirnov, A.: AERONET: a federated instrument network and data archive for aerosol characterization, *Remote Sens. Environ.*, 66, 1–16, 1998.
- Hong, S. Y., Dudhia, J., and Chen, S.: A revised approach to ice microphysical processes for the bulk parameterization of clouds and precipitation, *Mon. Weather Rev.*, 132, 103–120, 2004.
- Hong, S. Y., Noh, Y., and Dudhia, J.: A new vertical diffusion package with an explicit treatment of entrainment processes, *Mon. Weather Rev.*, 134, 2318–2341, doi:10.1175/MWR3199.1, 2006.
- Hostetler, C. A., Liu, Z., Reagan, J., Vaughan, M., Winker, D., Osborn, M., Hunt, W. H., Powell, K. A., and Trepte, C.: CALIOP Algorithm Theoretical Basis Document, Calibration and level 1 Data Products, PC-SCI-201, NASA Langley Research Center, Hampton, VA 23681, available online at [http://www-calipso.larc.nasa.gov/resources/project\\_documentation.php](http://www-calipso.larc.nasa.gov/resources/project_documentation.php), 2006.
- Huneeus, N., Schulz, M., Balkanski, Y., Griesfeller, J., Prospero, J., Kinne, S., Bauer, S., Boucher, O., Chin, M., Dentener, F., Diehl, T., Easter, R., Fillmore, D., Ghan, S., Ginoux, P., Grini, A., Horowitz, L., Koch, D., Krol, M. C., Landing, W., Liu, X., Mahowald, N., Miller, R., Morcrette, J.-J., Myhre, G., Penner, J., Perlwitz, J., Stier, P., Takemura, T., and Zender, C. S.: Global dust model intercomparison in AeroCom phase I, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 7781–7816, doi:10.5194/acp-11-7781-2011, 2011.
- Hunt, W. H., Winker, D. M., Vaughan, M. A., Powell, K. A., Lucker, P. L., and Weimer, C.: CALIPSO lidar description and performance assessment, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 7, 1214–1228, 2009.
- Kaskaoutis, D., Kambezidis, H., Nastos, P., and Kosmopoulos, P.: Study on an intense dust storm over Greece, *Atmos. Environ.*, 42, 6884–6896, 2008.
- Kaufman, Y. J., Boucher, O., Tanré, D., Chin, M., Remer, L. A., and Takemura, T.: Aerosol anthropogenic component estimated from satellite data, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L17804, doi:10.1029/2005GL023125, 2005.
- Keating, T. J. and Zuber, A.: Hemispheric Transport of Air Pollution 2007 Interim Report, United Nations, Economic Commission for Europe, Geneva, 2007.
- Koch, D., Schulz, M., Kinne, S., McNaughton, C., Spackman, J. R., Balkanski, Y., Bauer, S., Bernsten, T., Bond, T. C., Boucher, O., Chin, M., Clarke, A., De Luca, N., Dentener, F., Diehl, T., Dubovik, O., Easter, R., Fahey, D. W., Feichter, J., Fillmore, D., Freitag, S., Ghan, S., Ginoux, P., Gong, S., Horowitz, L., Iversen, T., Kirkevåg, A., Klimont, Z., Kondo, Y., Krol, M., Liu, X., Miller, R., Montanaro, V., Moteki, N., Myhre, G., Penner, J. E., Perlwitz, J., Pitari, G., Reddy, S., Sahu, L., Sakamoto, H., Schuster, G., Schwarz, J. P., Seland, Ø., Stier, P., Takegawa, N., Takemura, T., Textor, C., van Aardenne, J. A., and Zhao, Y.: Evaluation of black carbon estimations in global aerosol models, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 9001–9026, doi:10.5194/acp-9-9001-2009, 2009.
- Konsta, D., Chepfer, H., and Dufresne, J.: A process oriented description of tropical oceanic clouds for climate model evaluation, based on a statistical analysis of daytime A-train high spatial resolution observations, *Clim. Dynam.*, 10.1007/s00382-012-1533-7, 2012.
- Koren, I., Oreopoulos, L., Feingold, G., Remer, L. A., and Altaratz, O.: How small is a small cloud?, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3855–3864, doi:10.5194/acp-8-3855-2008, 2008.
- Laurent, B., Marticorena, B., Bergametti, G., Léon, J. F., and Mahowald, N. M.: Modeling mineral dust emissions from the Sahara desert using new surface properties and soil database, *J. Geophys. Res.*, 113, D14218, doi:10.1029/2007JD009484, 2008.
- Lelieveld, J., Berresheim, H., Borrmann, S., Crutzen, P. J., Dentener, F. J., Fischer, H., Feichter, J., Flatau, P. J., Heland, J., Holzinger, R., Korrmann, R., Lawrence, M. G., Levin, Z., Markowicz, K. M., Mihalopoulos, N., Minikin, A., Ramanathan, V., de Reus, M., Roelofs, G. J., Scheeren, H. A., Sciare, J., Schlager, H., Schultz, M., Siegmund, P., Steil, B., Stephanou, E. G., Stier, P., Traub, M., Warneke, C., Williams, J., and Ziereis, H.: Global air pollution crossroads over the Mediterranean, *Science*, 298, 794, doi:10.1126/science.1075457, 2002.
- Levy, R. C., Remer, L. A., Kleidman, R. G., Mattoo, S., Ichoku, C., Kahn, R., and Eck, T. F.: Global evaluation of the Collection 5 MODIS dark-target aerosol products over land, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 10399–10420, doi:10.5194/acp-10-10399-2010, 2010.
- Liu, Z., Omar, A., Vaughan, M., Hair, J., and Kittaka, C.: CALIPSO lidar observations of the optical properties of Saharan dust: a case study of long-range transport, *J. Geophys. Res.*, 113, D07207, doi:10.1029/2007JD008878, 2008.
- Liu, Z., Vaughan, M., Winker, D., Kittaka, C., Getzewich, B., Kuehn, R., Omar, A., Powell, K., Trepte, C., and Hostetler, C.: The CALIPSO lidar cloud and aerosol discrimination: version 2 algorithm and initial assessment of performance, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 26, 1198–1213, 2009.
- Liu, Z., Winker, D., Omar, A., Vaughan, M., Trepte, C., Hu, Y., Powell, K., Sun, W., and Lin, B.: Effective lidar ratios of dense dust layers over North Africa derived from the CALIOP measurements, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 112, 204–213, doi:10.1016/j.jqsrt.2010.05.006, 2011.
- Mattis, I., Ansmann, A., Müller, D., Wandinger, U., and Althausen, D.: Dual-wavelength Raman lidar observations of the extinction-to-backscatter ratio of Saharan dust, *Geophys. Res. Lett.*, 29, doi:10.1029/2002GL014721, 2002.
- Medeiros, B., Nuijens, L., Antoniazzi, C., and Stevens, B.: Low-latitude boundary layer clouds as seen by CALIPSO, *J. Geophys. Res.*, 115, D23207, doi:10.1029/2010JD014437, 2010.
- Menut, L.: Sensitivity of hourly Saharan dust emissions to NCEP and ECMWF modelled wind speed, *J. Geophys. Res.-Atmos.*,



- 113, D16201, doi:10.1029/2007JD009522, 2008.
- Menut, L., Goussebaile, A., Bessagnet, B., Khvorostiyarov, D., and Ung, A.: Impact of realistic hourly emissions profiles on modelled air pollutants concentrations, *Atmos. Environ.*, 49, 233–244, 2012.
- Mishchenko, M. I., Travis, L. D., Kahn, R. A. and West, R. A.: Modeling phase functions for dust-like tropospheric aerosols using a shape mixture of randomly oriented polydisperse spheroids, *J. Geophys. Res.*, 102, 16831–16847, 1997.
- Mlawer, E., Taubman, S., Brown, P., Iacono, M., and Clough, S.: Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM a validated correlated-k model for the longwave, *J. Geophys. Res.*, 102, 16663–16682, 1997.
- Monks, P. S., Granier, C., Fuzzi, S., Stohl, A., Williams, M. L., Aki-moto, H., Amann, M., Baklanov, A., Baltensperger, U., Bey, I., Blake, N., Blake, R. S., Carslaw, K., Cooper, O. R., Dentener, F., Fowler, D., Fragkou, E., Frost, G. J., Generoso, S., Ginoux, P., Grewe, V., Guenther, A., Hansson, H. C., Henne, S., Hjorth, J., Hofzumahaus, A., Huntrieser, H., Isaksen, I. S. A., Jenkin, M. E., Kaiser, J., Kanakidou, M., Klimont, Z., Kul-mala, M., Laj, P., Lawrence, M. G., Lee, J. D., Liousse, C., Maione, M., McFiggans, G., Metzger, A., Mieville, A., Mousiopoulos, N., Orlando, J. J., O'Dowd, C. D., Palmer, P. I., Parrish, D. D., Petzold, A., Platt, U., Poschl, U., Prevot, A. S. H., Reeves, C. E., Reimann, S., Rudich, Y., Sellegri, K., Steinbrecher, R., Simpson, D., ten Brink, H., Theloke, J., van der Werf, G., Vautard, R., Vestreng, V., Vlachokostas, Ch., and von Glasow, R.: Atmospheric composition change global and regional air quality, *Atmos. Environ.*, 43, 5268–5350, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.08.021, 2009.
- Müller, D., Mattis, I., Wandinger, U., Althausen, D., Ansmann, A., Dubovik, O., Eckhardt, S., and Stohl, A.: Saharan dust over a Central European EARLINET-AERONET site: Combined observations with Raman lidar and Sun photometer, *J. Geophys. Res.*, 108, 4345, doi:10.1029/2002JD002918, 2003.
- Nenes, A., Pilinis, C., and Pandis, S.: ISORROPIA: a new thermodynamic model for inorganic multicomponent atmospheric aerosols, *Aquat. Geochem.*, 4, 123–152, 1998.
- Omar, A., Winker, D. M., Vaughan, M. A., Hu, Y., Trepte, C. R., Ferrare, R. A., Lee, K.-P., Hostetler, C. A., Kittaka, C., Rogers, R. R., Kuehn, R. E., and Liu, Z.: The CALIPSO automated aerosol classification and lidar ratio selection algorithm, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 26, 1994–2014, 2010.
- Péré, J. C., Mallet, M., Bessagnet, B., and Pont, V.: Evidence of the aerosol core-shell mixing state over Europe during the heat wave of summer 2003 by using CHIMERE simulations and AERONET inversions, *Geophys. Res. Lett.*, 36, L09807, doi:10.1029/2009GL037334, 2009.
- Péré, J., Mallet, M., Pont, V., and Bessagnet, B.: Evaluation of an aerosol optical scheme in the chemistry transport model CHIMERE, *Atmos. Environ.*, 44, 3688–3699, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.06.034, 2010.
- Pope, C. A., Burnett, R. T., Thun, M. J., Calle, E. E., Krewski, D., and Thurston, K. I. G. D.: Lung cancer, cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine particulate air pollution, *JAMA-J. Am. Med. Assoc.*, 287, 1132–1141, 2002.
- Powell, K. A., Hostetler, C. A., Liu, Z., Vaughan, M. A., Kuehn, R. E., Hunt, W. H., Lee, K.-P., Trepte, C. R., Rogers, R. R., Young, S. A., and Winker, D. M.: CALIPSO lidar calibration algorithms. Part I: nighttime 532 nm parallel channel and 532 nm perpendicular channel, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 26, 2015–2033, 2009.
- Putaud, J.-P., Van Dingenen, R., Alastuey, A., Bauer, H., Birmili, W., Cyrys, J., Flentje, H., Fuzzi, S., Gehrig, R., Hansson, H. C., Harrison, R. M., Herrmann, H., Hitenberger, R., Hüglin, C., Jones, A. M., Kasper-Giebl, A., Kiss, G., Kousam, A., Kuhlbusch, T. A. J., Löschau, G., Maenhaut, W., Molnar, A., Moreno, T., Pekkanen, J., Perrino, C., Pitz, M., Puxbaum, H., Querol, X., Rodriguez, S., Salma, I., Schwarz, J., Smolik, J., Schneider, J., Spindler, G., ten Brink, H., Tursic, J., Viana, M., Wiedensohler, A., and Raes, F.: A European aerosol phenomenonology – 3: physical and chemical characteristics of particulate matter from 60 rural, urban, and kerbside sites across Europe, *Atmos. Environ.*, 44, 1308–1320, 2010.
- Querol, X., Pey, J., Pandolfi, M., Alastuey, A., Cusack, M., Perez, N., Moreno, T., Viana, M., Mihalopoulos, N., Kallo, G., and Kleanthous, S.: African dust contributions to mean ambient PM<sub>10</sub> mass-levels across the Mediterranean Basin, *Atmos. Environ.*, 43, 4266–4277, 2009.
- Remer, L. A., Kaufman, Y. J., Tanré, D., Mattoo, S., Chu, D. A., Martins, J. V., Li, R.-R., Ichoku, C., Levy, R. C., Kleidman, R. G., Eck, T. F., Vermote, E., and Holben, B. N.: The MODIS aerosol algorithm, products and validation, special section, *J. Atmos. Sci.*, 62, 947–973, 2005.
- Ridley, D. A., Heald, C. L., and Ford, B.: North African dust export and deposition: a satellite and model perspective, *J. Geophys. Res.*, 117, D02202, doi:10.1029/2011JD016794, 2012.
- Rothman, L. S., Gordon, I. E., Barbe, A., Chris Benner, D., Bernath, P. F., Birk, M., Boudon, V., Brown, L. R., Campargue, A., Champion, J.-P., Chance, K., Coudert, L. H., Dana, V., Devi, V. M., Fally, S., Flaud, J.-M., Gamache, R. R., Goldman, A., Jacquemart, D., Kleiner, I., Lacome, N., Lafferty, W. J., Min, J.-Y., Massie, S. T., Mikhailenko, S. N., Miller, C. E., Moazzen-Ahmadi, N., Naumenko, O. V., Nikitin, A. V., Orphal, J., Perevalov, V. I., Perrin, A., Predoi-Cross, A., Rinsl, C. P., Rotger, M., Šimečková, M., Smith, M. A. H., Sung, K., Tashkun, S. A., Tennyson, J., Toth, R. A., Vaele, A. C., and Ver Auwera, J.: The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 100, 533–572, 2009.
- Rouil, L., Honore, C., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Malherbe, L., Meleux, F., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V., and Poisson, N.: PREV'AIR: an operational forecasting and mapping system for air quality in Europe, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 90, 73–83, doi:10.1175/2008BAMS2390.1, 2009.
- Schmidt, H., Derognat, C., Vautard, R., and Beekmann, M.: A comparison of simulated and observed ozone mixing ratios for the summer of 1998 in Western Europe, *Atmos. Environ.*, 35, 6277–6297, 2001.
- Schmidt, G. L., Vaughan, M., MacDonnell, D., Su, W., Dubovik, O., Lapyonok, T., and Trepte, C.: Comparison of CALIPSO aerosol optical depth retrievals to AERONET measurements, and a climatology for the lidar ratio of dust, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 7431–7452, doi:10.5194/acp-12-7431-2012, 2012.
- Shinn, E., Smith, G., Prospero, J., Betzer, P., Hayes, M., Garrison, V., and Barber, R.: African dust and the demise of caribbean coral reefs, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 3029–3032, 2000.
- Stern, R., Builtjes, P., Schaap, M., Timmermans, R., Vautard, R., Hodzic, A., Memmesheimer, M., Feldmann, H., Renner, E.,



- Wolke, R., and Kerschbaumer, A.: A model inter-comparison study focussing on episodes with elevated PM<sub>10</sub> concentrations, *Atmos. Environ.*, 42, 19, 4567–4588, 2008.
- Stohl, A., Eckhardt, S., Forster, C., James, P., and Spichtinger, N.: On the pathways and timescales of intercontinental air pollution transport, *J. Geophys. Res.*, 107, 4684, 10.1029/2001JD001396, 2002.
- Tanré, D., Bréon, F. M., Deuzé, J. L., Dubovik, O., Ducos, F., François, P., Goloub, P., Herman, M., Lifermann, A., and Waquet, F.: Remote sensing of aerosols by using polarized, directional and spectral measurements within the A-Train: the PARASOL mission, *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 1383–1395, doi:10.5194/amt-4-1383-2011, 2011.
- Textor, C., Schulz, M., Guibert, S., Kinne, S., Balkanski, Y., Bauer, S., Bernsten, T., Berglen, T., Boucher, O., Chin, M., Dentener, F., Diehl, T., Feichter, J., Fillmore, D., Ginoux, P., Gong, S., Grini, A., Hendricks, J., Horowitz, L., Huang, P., Isaksen, I. S. A., Iversen, T., Kloster, S., Koch, D., Kirkevåg, A., Kristjansson, J. E., Krol, M., Lauer, A., Lamarque, J. F., Liu, X., Montanaro, V., Myhre, G., Penner, J. E., Pitari, G., Reddy, M. S., Seland, Ø., Stier, P., Takemura, T., and Tie, X.: The effect of harmonized emissions on aerosol properties in global models – an AeroCom experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4489–4501, doi:10.5194/acp-7-4489-2007, 2007.
- Toon, O. and Ackerman, T.: Algorithms for the calculation of scattering by stratified spheres, *Appl. Optics*, 20, 3657–3660, 1981.
- van Donkelaar, A., Martin, R. V., and Park, R. J.: Estimating ground-level PM<sub>2.5</sub> using aerosol optical depth determined from satellite remote sensing, *J. Geophys. Res.*, 111, D21201, doi:10.1029/2005JD006996, 2006.
- Vautard, R., Bessagnet, B., Chin, M., and Menut, L.: On the contribution of natural Aeolian sources to particulate matter concentrations in Europe: testing hypotheses with a modelling approach, *Atmos. Environ.*, 39, 3291–3303, 2005.
- Vautard, R., Maldi, M., Menut, L., Beekmann, M., and Colette, A.: Boundary layer photochemistry simulated with a two-stream convection scheme, *Atmos. Environ.*, 41, 8275–8287, 2007.
- Vuolo, M., Chepfer, H., Menut, L., and Cesana, G.: Comparison of mineral dust layers vertical structures modelled with CHIMERE-DUST and observed with the CALIOP lidar, *J. Geophys. Res.*, 114, D09214, doi:10.1029/2008JD011219, 2009.
- Wandinger, U., Tesche, M., Seifert, P., Ansmann, A., Müller, D., and Althausen, D.: Size matters: influence of multiple scattering on CALIPSO lightextinction profiling in desert dust, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L10801, doi:10.1029/2010GL042815, 2010.
- Wang, K., Dickinson, R. E., and Liang, S.: Clear sky visibility has decreased over land globally from 1973 to 2007, *Science*, 323, 1468–1470, 2009.
- Waquet, F., Riédi, J., Labonnote, L.-C., Goloub, P., Cairns, B., Deuzé, J.-L., and Tanré, D.: Aerosol remote sensing over clouds using A-Train observations, *J. Atmos. Sci.*, 66, 2468–2480, 2009.
- Winker, D. M., Vaughan, A. O., Hu, Y., Powell, K. A., Liu, Z., Hunt, W. H., and Young, S. A.: Overview of the CALIPSO mission and CALIOP data processing algorithms, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 26, 2310–2323, 2009.
- Winker, D. M.: Accounting for multiple scattering in retrievals from space lidar, *Proc. SPIE 5059*, 12th International Workshop on Lidar Multiple Scattering Experiments, 128 (April 7, 2003) doi:10.1117/12.512352, 2003.
- Young, S. and Vaughan, M.: The retrieval of profiles of particulate extinction from cloud-aerosol lidar infrared pathfinder satellite observations (CALIPSO) data: algorithm description, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 26, 1105–1119, 2009.
- Yu, H., Chin, M., Winker, D. M., Omar, A. H., Liu, Z., Kittaka, C., and Diehl, T.: Global view of aerosol vertical distributions from CALIPSO lidar measurements and GOCART simulations: regional and seasonal variations, *J. Geophys. Res.*, 115, D00H30, doi:10.1029/2009JD013364, 2010.
- Zarzycki, C. M. and Bond, T. C.: How much can the vertical distribution of black carbon affect its global direct radiative forcing?, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L20807, doi:10.1029/2010GL044555, 2010.
- Zhu, A., Ramanathan, V., Li, F., and Kim, D.: Dust plumes over the Pacific, Indian, and Atlantic oceans: climatology and radiative impact, *J. Geophys. Res.*, 112, D16208, doi:10.1029/2007JD008427, 2007.

## Bibliographie

- Ackerman, S., Strabala, K., Menzel, W., Frey, R., Moeller, C., and Gumley, L. : Discriminating clear sky from clouds with MODIS., *Journal of Geophysical Research*, 103, doi :10.1029/1998JD200032, 1998.
- Akagi, S. K., Yokelson, R. J., Wiedinmyer, C., Alvarado, M. J., Reid, J. S., Karl, T., Crounse, J. D., and Wennberg, P. : Emission factors for open and domestic biomass burning for use in atmospheric models, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, doi :10.5194/acp-11-4039-2011, 2011.
- Akimoto, H. : Global air quality and pollution, *Science*, 302, 1716–1719, 2003.
- Alfaro, S. C. and Gomes, L. : Modeling mineral aerosol production by wind erosion : Emission intensities and aerosol size distribution in source areas, *J. Geophys. Res.*, 106, 18 075–18 084, 2001.
- Amiridis, V., Kafatos, M., Perez, C., Kazadzis, S., Gerasopoulos, E., Mamouri, R. E., Papayannis, A., Kokkalis, P., Giannakaki, E., Basart, S., Daglis, I., and Zerefos, C. : The potential of the synergistic use of passive and active remote sensing measurements for the validation of a regional dust model., *Ann. Geophys.*, 27, 3155–3164, doi :10.5194/angeo-27-3155-2009, 2009.
- Amiridis, V., Giannakaki, E., Balis, D. S., Gerasopoulos, E., Pytharoulis, I., Zanis, P., Kazadzis, S., Melas, D., and Zerefos, C. : Smoke injection heights from agricultural burning in Eastern Europe as seen by CALIPSO, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11 567–11 576, doi :10.5194/acp-10-11567-2010, 2010.
- Andreae, M. and Crutzen, P. : Atmospheric aerosols : biogeochemical sources and role in atmospheric chemistry, *Science*, 276, 1052–1058, 1997.
- Andreae, M. O. and Merlet, P. : Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, *Global Biogeochem. Cycles*, 15, 995–966, doi :10.1029/2000GB001382, 2001.
- Ansmann, A., Tesche, D., Althausen, D., Muller, D., Seifert, P., Freudenthaler, V., Heese, B., Wiegner, M., Pisani, G., Knippertz, P., and Dubovik, O. : Long-range transport of Saharan dust to northern Europe : The 11-16 October 2001 outbreak observed with EARLINET, *J. Geophys. Res.*, 108, D24, doi :10.1029/2003JD003757, 2003.
- Barbosa, P., Camia, A., Kucera, J., Liberta, G., Palumbo, I., San-Miguel-Ayanz, J., and Schmuck, G. : Assessment of forest fire impacts and emissions in the European Union based on the European Forest Fire Information System, in : *Developments in Environmental Science*, edited by : Bytnerowicz, A., Arbaugh, M., Riebau, A., and Andersen, C., 8, 197–208, 2009.
- Barnaba, F., Angelini, F., Curci, G., and Gobbi, G. P. : An important fingerprint of wildfires on the European aerosol load, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10 487–10 501, doi :10.5194/acp-11-10487-2011, 2011.
- Bäumer, D., Vogel, B., Versick, S., Rinke, R., Mohler, O., and Schinaiter, M. : Relationship of visibility, aerosol optical thickness and aerosol size distribution in an ageing air mass over South-West Germany, *Atmos. Environ.*, 42, 989–998, 2008.
- Bessagnet, B., Hodzic, A., Vautard, R., Beekmann, M., Cheinet, S., Honore, C., Liousse, C., and Rouil, L. : Aerosol modeling with CHIMERE - Preliminary evaluation at the continental scale, *Atmospheric Environment*, 38, 2803–2817, 2004.
- Bessagnet, B., Menut, L., Aymoz, G., Chepfer, H., and Vautard, R. : Modeling dust emissions and transport within Europe : the Ukraine March 2007 event, *J. Geophys. Res.*, 113, doi :10.1029/2007JD009541, 2008.
- Bessagnet, B., Menut, L., Curci, G., Hodzic, A., Guillaume, B., Liousse, C., Moukhtar, S., Pun, B., Seigneur, C., and Schulz, M. : Regional modeling of carbonaceous aerosols over Europe - Focus on Secondary Organic Aerosols, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 61, 175–202, 2009.

- Bey, I., Jacob, D. J., Yantosca, R. M., Logan, J. A., Field, B. D., Fiore, A. M., Li, Q., Liu, H. Y., Mickley, L. J., and Schultz, M. G. : Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology : Model description and evaluation, *J. Geophys. Res.*, 106, 23 073–23 096, doi :10.1029/2001JD000807, 2001.
- Bolle, H.-J. : *Mediterranean Climate – Variability and Trends*, Springer, Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 2003.
- Boschetti, L. ., Roy, D., Barbosa, P., Boca, R., and Justice, C. : A MODIS assessment of the summer 2007 extent burned in Greece, *International Journal of Remote Sensing*, 29, 2433–2436, doi :10.1080/01431160701874561, 2008.
- Boselli, A., Caggiano, R., Cornacchia, C., Madonna, F., Macchiato, M., Mona, L., Pappalardo, G., and Trippetta, S. : Multiyear sun-photometer measurements for aerosol characterization in a Central Mediterranean site, *Atmospheric Research*, 104, 98–110, 2012.
- Boucher, O. : *Aérosols Atmosphériques : Propriétés et Impacts Climatiques*, Ingénierie et développement durable, Springer, 2012.
- Bréon, F., Vermeulen, A., and Descloitres, J. : An evaluation of satellite aerosol products against sunphotometer measurements, *Remote Sensing of Environment*, 115, 3102–3111, 2011.
- Bréon, F.-M. and Colzy, S. : Cloud detection from the spaceborne POLDER instrument and validation against surface synoptic observations., *J. Appl. Meteor.*, 38, 777–785, 1999.
- Brunekreef, B. and Holgate, S. : Air pollution and health, *Lancet*, 360, 1233–1242, 2002.
- Carslaw, K. S., Boucher, O., Spracklen, D. V., Mann, G. W., Rae, J. G. L., Woodward, S., and Kulmala, M. : A review of natural aerosol interactions and feedbacks within the Earth system, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 1701–1737, doi :10.5194/acp-10-1701-2010, 2010.
- Chazette, P. and Liousse, C. : A case study of optical and chemical apportionment for urban aerosols in Thessaloniki, *Atmospheric Environment*, 35, 2497–2506, 2001.
- Chepfer, H., Bony, S., Winker, D., Chiriaco, M., Dufresne, J., and Sèze, G. : Use of CALIPSO lidar observations to evaluate the cloudiness simulated by a climate model, *Geophysical Research Letters*, 35, doi :10.1029/2008GL034207, 2008.
- Chepfer, H., Bony, S., Winker, D., Cesana, G., Dufresne, J. L., Minnis, P., Stubenrauch, C. J., and Zeng, S. : The GCM Oriented CALIPSO Cloud Product (CALIPSO-GOCCP), *J. Geophys. Res.*, 115, doi : 10.1029/2009JD012251, 2010.
- Chepfer, H., Cesana, G., Winker, D., Getzewich, B., and Vaughan, M. : Comparison of two different cloud climatologies derived from CALIOP Level 1 observations : the CALIPSO-ST and the CALIPSO-GOCCP, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, in press, 2012.
- Coheur, P.-F., Clarisse, L., Turquety, S., Hurtmans, D., and Clerbaux, C. : IASI measurements of reactive trace species in biomass burning plumes, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5655–5667, 2009.
- Cuvelier, C., Thunis, P., Vautard, R., Amann, M., Bessagnet, B., Bedogni, M., Berkowicz, R., Brocheton, F., Builtjes, P., Denby, B., Douros, G., Graf, A., Honoré, C., Jonson, J., Kerschbaumer, A., de Leeuw, F., Moussiopoulos, N., Philippe, C., Pirovano, G., Rouil, L., Schaap, M., Stern, R., Tarrason, L., Vignati, E., Volta, L., White, L., Wind, P., and Zuber, A. : CityDelta : a model inter- comparison study to explore the impact of emission reductions in European cities in 2010,, *Atmos. Environ.*, 41, 189–207, doi :10.1016/j.atmosenv.2006.07.036, 2007.
- Dall'Osto, M., Harrison, R. M., Highwood, E. J., O'Dowd, C., Ceburnis, D., Querol, X., and Achterberg, E. P. : Variation of the mixing state of Saharan dust particles with atmospheric transport, *Atmospheric Environment*, 44, 3135–3146, doi :10.1016/j.atmosenv.2010.05.030, 2010.
- Davidson, C., Phalen, R., and Solomon, P. : Airborne particulate matter and human health : A review., *Aerosol Science and Technology*, 39 (8), 737–749, 2005.
- De Rooij, W. A. and Van der Stap, C. C. A. H. : Expansion of Mie scattering matrices in generalized spherical functions, *Astronomy and Astrophysics*, 131, 237–248, 1984.

- de Villiers, R. A., Ancellet, G., Pelon, J., Quennehen, B., Schwarzenboeck, A., Gayet, J. F., and Law, K. S. : Airborne measurements of aerosol optical properties related to early spring transport of mid-latitude sources into the Arctic, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 5011–5030, doi :10.5194/acp-10-5011-2010, 2010.
- Dickerson, R., Kondragunta, S., Stenchikov, G., Civerolo, K. L., Doddridge, B. G., and Holben, B. N. : The impact of aerosols on solar ultraviolet-radiation and photochemical smog, *Science*, 215, 827–830, 1997.
- Donaldson, K., Stone, V., Seaton, A., and et al. : Ambient particle inhalation and the cardiovascular system : potential mechanisms., *Environ. Health Perspect.*, 109 (Suppl 4), 523–527, 2001.
- Dubovik, O. and King, M. D. : A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements, *Journal of Geophysical Research*, 105, 20 673–20 696, 2000.
- Dubovik, O., Holben, B. N., Eck, T., Smirnov, A., Kaufman, Y. J., King, M. D., Tanré, D., and Slutsker, I. : Variability of Absorption and Optical Properties of Key Aerosol Types Observed in Worldwide Locations, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59, 590–608, doi :http://dx.doi.org/10.1175/1520-0469(2002)059<0590:VOAAOP>2.0.CO;2, 2002a.
- Dubovik, O., Holben, B. N., Lapyonok, T., Sinyuk, A., Mishchenko, M. I., Yang, P., and Slutsker, I. : Non-spherical aerosol retrieval method employing light scattering by spheroids, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 1415, doi :10.1029/2001GL014506, 2002b.
- Escudero, M., Querol, X., Avila, A., and Cuevas, E. : Origin of the exceedances of the European daily PM limit value in regional background areas of Spain, *Atmospheric Environment*, 41, 730–744, 2007.
- Ford, B. and Heald, C. L. : An A-Train and model perspective on the vertical distribution of aerosols and CO in the Northern Hemisphere, *Journal of Geophysical Research*, 117, doi :10.1029/2011JD016977, 2012.
- Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Berntsen, T., Betts, R., Fahey, D., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D., Myhre, G., Nganga, J., Prinn, R., Raga, G., Schulz, M., and Dorland, R. V. : Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing., *Climate Change 2007 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, 2007.
- Founda, D. and Giannakopoulos, C. : The exceptionally hot summer of 2007 in Athens, Greece - A typical summer in the future climate ?, *Global and Planetary Change*, 67, 227–236, doi :10.1016/j.gloplacha.2009.03.013, 2009.
- Freitas, S. R., Longo, K. M., Chatfield, R., Latham, D., Silva Dias, M. A. F., Andreae, M. O., Prins, E., Santos, J. C., Gielow, R., and Carvalho Jr., J. A. : Including the sub-grid scale plume rise of vegetation fires in low resolution atmospheric transport models, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 3385– 3398, 2007.
- Gasteiger, J., Wiegner, M., Groß, S., Freudenthaler, V., Toledano, C., Tesche, M., and Kandler, K. : : Modelling lidar-relevant optical properties of complex mineral dust aerosols, *Tellus B*, 63, 725– 741, doi :10.1111/j.1600-0889.2011.00559.x., 2011.
- Gelbard, F. and Seinfeld, J. H. : Simulation of multicomponent aerosol dynamics, *Journal of colloid and Interface Science*, 78, 485–501, 1980.
- Gerasopoulos, E., Amiridis, V., Kazadzis, S., Kokkalis, P., Eleftheratos, K., Andreae, M., Andreae, T., El-Askary, H., and Zerefos, C. : Three-year ground based measurements of aerosol optical depth over the Eastern Mediterranean : the urban environment of Athens, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 2145–2159, doi :10.5194/acp-11-2145-2011, 2011.
- Giglio, L., van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Collatz, G. J., and Kasibhatla, P. S. : Global estimation of burned area using MODIS active fire observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 957–974, 2006.
- Giglio, L., Loboda, T., Roy, D. P., Quayle, B., and Justice, C. O. : An active-fire based burned area mapping algorithm for the MODIS sensor An active-fire based burned area mapping algorithm for the MODIS sensor, *Remote Sensing of Environment*, 113, 408–420, doi :10.1016/j.rse.2008.10.006, 2009.

- Ginoux, P., Chin, M., Tegen, I., Prospero, J. M., Holben, B., Dubovik, O., and Lin, S. J. : Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model, *Journal of Geophysical Research*, 106, 20 255–20 273, 2001.
- Gobbi, G., Barnaba, F., and Ammannat, L. : Estimating the impact of Saharan dust on the year 2001 PM10 record of Rome, Italy, *Atmospheric Environment*, 41, 261–275, 2007.
- Gordon, H. : Atmospheric correction of ocean color imagery in the Earth Observing System era, *J. Geophys. Res.*, 102, 17 081–17 106, doi :10.1029/96JD02443, 1997.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P., and Geron, C. : Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 2006.
- Hale, G. M. and Querry, M. R. : Optical Constants of Water in the 200 nm to 200  $\mu\text{m}$  Wavelength Region, *Applied Optics*, 12, 555–563, doi :10.1364/AO.12.000555, 1973.
- Hänel, G. : The properties of atmospheric particles as functions of the relative humidity at thermodynamic equilibrium with surrounding moist air, *Advances in Geophysics*, 19, 73–188, 1976.
- Hansen, M. C. and Reed, B. : A comparison of the IGBP DISCover and University of Maryland 1 km global land cover products, *International Journal of Remote Sensing*, 21, 1365–1373, 2000.
- Herman, M., Deuzé, J. L., Devaux, C., Goloub, P., Bréon, F. M., and Tanré, D. : Remote sensing of aerosols over land surfaces, including polarisation measurements. Application to Polder measurements., *Journal of Geophysical Research*, 102, 17 039–17 049., 1997.
- Hodnebrog, Ø., Solberg, S., Stordal, F., Svendby, T. M., Simpson, D., Gauss, M., Hilboll, A., Pfister, G. G., Turquet, S., Richter, A., Burrows, J. P., and van der Gon, H. A. C. D. : Impact of forest fires, biogenic emissions and high temperatures on the elevated Eastern Mediterranean ozone levels during the hot summer of 2007, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 8727–8750, doi :10.5194/acp-12-8727-2012, 2012.
- Hodzic, A., Chepfer, H., Vautard, R., Chazette, P., Beekmann, M., Bessagnet, B., Chatenet, B., Cuesta, J., Drobninski, P., Goloub, P., Haefelin, M., and Morille, Y. : Comparison of aerosol chemistry transport model simulations with lidar and Sun photometer observations at a site near Paris, *Journal of Geophysical Research*, 109, doi :10.1029/2004JD004735, 2004.
- Hodzic, A., Vautard, R., Bessagnet, B., Lattuati, M., and Moreto, F. : Long-term urban aerosol simulation versus routine particulate matter observations, *Atmos. Environ.*, 39, 5851–5864, doi :10.1016/j.atmosenv.2005.06.032, 2005.
- Hodzic, A., Madronich, S., Bohn, B., Massie, S., Menut, L., and Wiedinmyer, C. : Wildfire particulate matter in Europe during summer 2003 : meso-scale modeling of smoke emissions, transport and radiative effects, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 4043–4064, 2007.
- Hoerling, M. P., Hurrell, J. W., Xu, T., Bates, G. T., and Phillips, A. : Twentieth century North Atlantic climate change. Part II : understanding the effect of Indian Ocean warming, *Climate Dynamics*, 23, 391, 2004.
- Holben, B., Eck, T., Slutsker, I., Tanré, D., Buis, J., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J., Kaufman, Y., Nakajima, T., Lavenu, F., Jankowiak, I., and Smirnov, A. : AERONET : A federated instrument network and data archive for aerosol characterization, *Remote Sensing of Environment*, 66, 1–16, 1998.
- Honoré, C., Rouïl, L., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J., Malherbe, L., Meleux, F., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V., and Poisson, N. : Predictability of European air quality : Assessment of 3 years of operational forecasts and analyses by the PREV’AIR system, *J. Geophys. Res.*, 113, D04 301, doi :10.1029/2007JD008761, 2008.
- Horowitz, L., Walters, S., Mauzerall, D., Emmons, L., Rasch, P. J., Granier, C., Tie, X., Lamarque, J.-F., Schultz, M. G., Tyndall, G. S., Orlando, J. J., and Brasseur, G. : A global simulation of tropospheric ozone and related tracers : Description and evaluation of MOZART, version 2, *Journal of Geophysical Research*, 108, 4784, doi :10.1029/2002JD002853, 2003.

- Hunt, W. H., Winker, D. M., Vaughan, M. A., Powell, K. A., Lucker, P. L., and Weimer, C. : CALIPSO Lidar Description and Performance Assessment, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 7, 1214–1228, 2009.
- Hyer, E. J. and Reid, J. S. : Baseline uncertainties in biomass burning emission models resulting from spatial error in satellite active fire location data, *Geophys. Res. Lett.*, 36, doi :10.1029/2008GL036767, 2009.
- Ito, A. and Penner, J. : Estimates of CO emissions from open biomass burning in southern Africa for the year 2000, *J. Geophys. Res.*, 110, doi :10.1029/2004JD005347, 2005.
- Iversen, J. D. and White, B. R. : Saltation threshold on Earth, Mars and Venus, *Sedimentology*, 29, 111–119, 1982.
- Jacobson, M. Z. : Studying the effects of aerosols on vertical photolysis rate coefficient and temperature profiles over an urban airshed, *J. Geophys. Res.*, 103, 10 593–10 604, 1998.
- JRC : Forest fires in Europe 2007. Report No 8, Tech. rep., EC Joint Research Centre, Institute for Environment and Sustainability, Ispra, Italy, 2008.
- Kallos, G., Astitha, M., Katsafados, P., and Spyrou, C. : Long-Range Transport of Anthropogenically and Naturally Produced Particulate Matter in the Mediterranean and North Atlantic : Current State of Knowledge, *J. Appl. Meteorol. Climatol.*, 46, 1230–1251, doi :10.1175/jam2530.1, 2007., 2007.
- Kampa, M. and Castanas, E. : Human health effects of air pollution, *Environmental Pollution*, 151, 362–367, doi :10.1016/j.envpol.2007.06.012, 2008.
- Kasischke, E. S. and Penner, J. E. : Improving global estimates of atmospheric emissions from biomass burning, *J. Geophys. Res.*, 109, doi :10.1029/2004JD004972, 2004.
- Kaskaoutis, D., Kambezidis, H., Nastos, P., and Kosmopoulos, P. : Study on an intense dust storm over Greece, *Atmospheric Environment*, 42, 6884–6896, 2008.
- Kaskaoutis, D., Kharol, S. K., Sifakis, N., Nastos, P., Sharma, A. R., Badarinath, K., and Kambezidis, H. : Satellite monitoring of the biomass-burning aerosols during the wildfires of August 2007 in Greece : Climate implications, *Atmospheric Environment*, 45, 716–726, doi :10.1016/j.atmosenv.2010.09.043, 2011.
- Kerminen, V. M., Pakkanen, T. A., and Hillamo, R. E. : Interactions between inorganic trace gases and supermicrometer particles at a coastal site, *Atmospheric Environment*, 31, 2753–2765, 1997.
- Kirchstetter, T. W., Novakov, T., and Hobbs, P. V. : Evidence that the spectral dependence of light absorption by aerosols is affected by organic carbon, *J. Geophys. Res.*, 109, 8476, doi :10.1029/2004JD004999, 2004.
- Koçak, M., Mihalopoulos, N., and Kubilaya, N. : Contributions of natural sources to high PM10 and PM2.5 events in the eastern Mediterranean, *Atmospheric Environment*, 41, 3806–3818, doi :10.1016/j.atmosenv.2007.01.009, 2007.
- Konsta, D., Chepfer, H., and Dufresne, J. : A process oriented description of tropical oceanic clouds for climate model evaluation, based on a statistical analysis of daytime A-train high spatial resolution observations, *Climate Dynamics*, in press, 2012.
- Koren, I., Oreopoulos, L., Feingold, G., Remer, L. A., and Altaratz, O. : How small is a small cloud ?, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3855–3864, doi :10.5194/acp-8-3855-2008, 2008.
- Korontzi, S., McCarty, J., Loboda, T., Kumar, S., and Justice, C. : Global distribution of agricultural fires in croplands from 3 years of Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) data, *Global Biogeochem. Cy.*, 20, doi :10.1029/2005GB002529, 2006., 2006.
- Krinner, G., Viovy, N., de Noblet-Ducoudre, N., Ogee, J., Polcher, J., Friedlingstein, P., Ciais, P., Sitch, S., and Prentice, I. : A dynamic global vegetation model for studies of the coupled atmosphere-biosphere system, *Glob. Biogeochem. Cycle*, 19, doi :10.1029/2003GB002199, 2005.
- Kulmala, M., A., L., and Pirjola, L. : Parameterization for sulfuric acid/water nucleation rates, *Journal of Geophysical Research*, 103, 8301–8307, 1998.

- Langmann, B., Varghese, S., Marmer, E., Vignati, E., Wilson, J., Stier, P., and O'Dowd, C. : Aerosol distribution over Europe : a model evaluation study with detailed aerosol microphysics, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 1591–1607, 2008.
- Lattuati, M. : Contribution à l'étude du bilan de l'ozone troposphérique à l'interface de l'Europe et de l'Atlantique Nord : modélisation lagrangienne et mesures en altitude, Thèse de sciences, Université Paris 6, France, 1997.
- Laurent, B., Marticorena, B., Bergametti, G., Léon, J. F., and Mahowald, N. M. : Modeling mineral dust emissions from the Sahara desert using new surface properties and soil database, *Journal of Geophysical Research*, 113, doi :10.1029/2007JD009484, 2008.
- Lelieveld, J., Berresheim, H., Borrmann, S., Crutzen, P. J., Dentener, F. J., Fischer, H., Feichter, J., Flatau, P. J., Heland, J., Holzinger, R., Korrmann, R., Lawrence, M. G., Levin, Z., Markowicz, K. M., Mihalopoulos, N., Minikin, A., Ramanathan, V., de Reus, M., Roelofs, G. J., Scheeren, H. A., Sciare, J., Schlager, H., Schultz, M., Siegmund, P., Steil, B., Stephanou, E. G., Stier, P., Traub, M., Warneke, C., Williams, J., and Ziereis, H. : Global Air Pollution Crossroads over the Mediterranean, *Science*, 298, 794, doi :10.1126/science.1075457, 2002.
- Lesins, G., Chylek, P., and Lohmann, U. : A study of internal and external mixing scenarios and its effect on aerosol optical properties and direct radiative forcing, *Journal of Geophysical Research*, 107, 4094, doi :10.1029/2001JD000973, 2002.
- Levy, R. C., Remer, L. A., Mattoo, S., Vermote, E. F., and Kaufman, Y. J. : Second-generation operational algorithm : Retrieval of aerosol properties over land from inversion of Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer spectral reflectance, *Journal of Geophysical Research*, 112, doi :10.1029/2006JD007811, 2007.
- Lionello, P., Malanotte-Rizzoli, P., and Boscolo, R., eds. : Mediterranean Climate Variability, chap. I : The Mediterranean Climate : An overview of the main characteristics and issues, pp. 1–26, Elsevier, 2006.
- Liou, K.-N. : An introduction to atmospheric radiation, vol. v.84 of *International geophysics series*, ISBN 0-12-451451-0, Amsterdam ; Boston : Academic Press, 2nd edn., 2002.
- Liousse, C., Andreae, M., Artaxo, P., Barbosa, P., Cachier, H., Grégoire, J., Hobbs, P., Lavoué, D., Mouillot, F., Penner, J., Scholes, M., and Schulz, M. : Deriving global quantitative estimates for spatial and temporal distributions of biomass burning emissions, Kluwer, 2004.
- Liousse, C., Guillaume, B., Grégoire, J., Mallet, M., Galy, C., Poirson, A., Solmon, F., Pont, V., Mariscal, A., Dungal, L., Rosset, R., Yoboué, V., Bedou, X., Serça, D., Konaré, A., Granier, C., and Mieville, A. : Updated African biomass burning emission inventories in the framework of the AMMA-IDAF program, with an evaluation of combustion aerosols, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 9631–9646, doi :10.5194/acp-10-9631-2010, 2008.
- Liu, Z., Vaughan, M., Winker, D., Kittaka, C., Getzewich, B., Kuehn, R., Omar, A., Powell, K., Treppe, C., and Hostetler, C. : The CALIPSO lidar cloud and aerosol discrimination : Version 2 algorithm and initial assessment of performance, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 26, 1198–1213, doi :10.1175/2009JTECHA1229.1, 2009.
- Liu, Z., Winker, D., Omar, A., Vaughan, M., Treppe, C., Hu, Y., Powell, K., Sun, W., and Lin, B. : Effective lidar ratios of dense dust layers over North Africa derived from the CALIOP measurements, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 112, 204–213, doi :10.1016/j.jqsrt.2010.05.006, 2011.
- Lohmann, U. and Feichter, J. : Global indirect aerosol effects : a review, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 715–737, doi :10.5194/acp-5-715-2005, 2005.
- Loosmore, G. and Cederwall, R. : Precipitation scavenging of atmospheric aerosols for emergency response applications : testing an updated model with new real-time data, *Atmospheric Environemnt*, 38, 993–1003, 2004.
- Luterbacher, J., Liniger, M. A., Menzel, A., Estrella, N., Della-Marta, P. M., Pfister, C., Rutishauser, T., and Xoplaki, E. : Exceptional European warmth of autumn 2006 and winter 2007 : Historical context, the underlying dynamics, and its phenological impacts,, *Geophys. Res. Lett.*, 34, doi :10.1029/2007gl029951, 2007.



- Madronich, S., McKenzie, R. E., Bjorn, L. O., and Caldwell, M. M. : Changes in biologically active ultraviolet radiation reaching the Earth's surface,, *Journal of Photochemistry and Photobiology B : Biology*, 46, 5–19, doi :10.1016/S1011-1344(98)00182-1, 1998.
- Mahowald, N. : Aerosol Indirect Effect on Biogeochemical Cycles and Climate, *Science*, 334, 794, doi : 10.1126/science.1207374, 2011.
- Maignan, F., Bréon, F.-M., Chevallier, F., Viovy, N., Ciais, P., Garrec, C., Trules, J., and Mancip, M. : Evaluation of a Global Vegetation Model using time series of satellite vegetation indices, *Geosci. Model Dev.*, 4, doi :10.5194/gmd-4-1103-2011, 2011.
- Martcorena, B. and Bergametti, G. : Modelling the atmospheric dust cycle : 1-Design a soil-derived dust emissions scheme, *Journal of Geophysical Research*, 100, 16 415–16 430, 1995.
- Mattis, I., Ansmann, A., Müller, D., Wandinger, U., and Althausen, D. : Dual-wavelength Raman lidar observations of the extinction-to-backscatter ratio of Saharan dust, *Geophys. Res. Lett.*, 29, doi :10.1029/2002GL014721, 2002.
- Medeiros, B., Nuijens, L., Antoniazzi, C., and Stevens, B. : Low-latitude boundary layer clouds as seen by CALIPSO, *J. Geophys. Res.*, 115, doi :10.1029/2010JD014437, 2010.
- Menut, L., C.Schmechtig, and B.Martcorena : Sensitivity of the sandblasting fluxes calculations to the soil size distribution accuracy, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 22, 1875–1884, 2005.
- Menut, L., G.Foret, and G.Bergametti : Sensitivity of mineral dust concentrations to the model size distribution accuracy, *Journal of Geophysical Research - Atmospheres*, 112, doi :10.1029/2006JD007766, 2007.
- Menut, L., Goussebaile, A., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., and Ung, A. : Impact of realistic hourly emissions profiles on modelled air pollutants concentrations, *Atmospheric Environment*, 49, 233–244, doi :10.1016/j.atmosenv.2011.11.057, 2012.
- Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, A., Mailler, S., Meleux, F., Monge, J.-L., Pison, I., Turquety, S., Valari, M., Vautard, R., and Vivanco, M. G. : Regional atmospheric composition modeling with CHIMERE, *Geosci. Model Dev. Discuss.*, 6, 203–329, doi :10.5194/gmdd-6-203-2013, 2013a.
- Menut, L., Perez Garcia-Pando, C., Haustein, K., Bessagnet, B., Prigent, C., and Alfaro, S. : Relative impact of roughness and soil texture on mineral dust emission fluxes modeling, *Journal of Geophysical Research*, in press, 2013b.
- Mie, G. : Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen, *Ann. Phys. Leipzig*, 330, 377–445, 1908.
- Millán, M., Sanz, M. J., Salvador, R., and Mantilla, E. : Atmospheric dynamics and ozone cycles related to nitrogen deposition in the western Mediterranean, *Environmental Pollution*, 118, 167–186, 2002.
- Miranda, A., Monteiro, A., Martins, V., Carvalho, A., and Borrego, C., eds. : The 2003 fire season in Portugal : impacts on air quality, *Proceedings of the 7th Symposium on Fire and Forest Meteorology*, American Meteorological Society, Bar Harbor, ME., 2007.
- Mishchenko, M. I., Travis, L. D., Kahn, R. A., and West, R. A. : Modeling phase functions for dust-like tropospheric aerosols using a shape mixture of randomly oriented polydisperse spheroids, *J. Geophys. Res.*, 102, 16 831–16 847, doi :10.1029/96JD02110, 1997.
- Monahan, E. C. : In *The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling*, chap. The ocean as a source of atmospheric particles, pp. 129–163, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Holland, 1986.
- Monks, P., Granier, C., Fuzzi, S., Stohl, A., Williams, M., Akimoto, H., Amann, M., Baklanov, A., Baltensperger, U., Bey, I., Blake, N., Blake, R., Carslaw, K., Cooper, O., Dentener, F., Fowler, D., Fragkou, E., Frost, G., Generoso, S., Ginoux, P., Grewe, V., Guenther, A., Hansson, H., Henne, S., Hjorth, J., Hofzumahaus, A., Huntrieser, H., Isaksen, I., Jenkin, M., Kaiser, J., Kanakidou, M., Klimont, Z., Kulmala, M., Laj, P., Lawrence, M., Lee, J., Lioussse, C., Maione, M., McFiggans, G., Metzger, A., Mieville, A., Moussiopoulos, N., Orlando, J., O'Dowd, C., Palmer, P., Parrish, D., Petzoldt, A., Plattow, U., Pöschl, G.,

- U., Prévôt, A., Reeves, C., Reimannw, S., Rudichpp, Y., Sellegri, K., Steinbrecher, R., Simpson, D., ten Brink andJ. Theloke, H., van der Werf, G., Vautard, R., Vestreng, V., Vlachokostas, C., and von Glasow, R. : Atmospheric composition change - global and regional air quality, *Atmospheric Environment*, 43, 5268–5350, 2009.
- Müller, D., Mattis, I., Wandinger, U., Althausen, D., Ansmann, A., Dubovik, O., Eckhardt, S., and Stohl, A. : Saharan dust over a Central European EARLINET-AERONET site : Combined ob- servations with Raman lidar and Sun photometer, *J. Geophys. Res.*, 108, 4345, doi :10.1029/2002JD002918, 2003.
- Nenes, A., Pilinis, C., and Pandis, S. : ISORROPIA : A new thermodynamic model for inorganic multi- component atmospheric aerosols, *Aquatic Geochem.*, 4, 123–152, 1998.
- Omar, A. and al : The CALIPSO Automated Aerosol Classification and Lidar Ratio Selection Algorithm, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 26, 1994–2014, 2009.
- Pace, G., Meloni, D., and di Sarra, A. : Forest fire aerosol over the Mediterranean basin during summer 2003, *J. Geophys. Res.*, 110, doi :10.1029/2005JD005986, 2005.
- Pateraki, S., Asimakopoulos, D., Flocas, H., Maggos, T., and Vasilakos, C. : The role of meteorology on different sized aerosol fractions (PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>, PM<sub>2.5–10</sub>), *Science of the Total Environment*, 419, 124–135, doi :10.1016/j.scitotenv.2011.12.064, 2012.
- Péré, J., Mallet, M., Bessagnet, B., and Pont, V. : Evidence of the aerosol core-shell mixing state over Eu- rope during the heat wave of summer 2003 by using CHIMERE simulations and AERONET inversions, *Geophysical Research Letters*, 36, doi :10.1029/2009GL037334, 2009.
- Perez, C., Nickovic, S., Baldasano, J., Sicard, M., Rocadenbosch, F., and Cachorro, V. E. : A long Saharan dust event over the Western Mediterranean : lidar, sun photometer observations and regional dust modeling, *J. Geophys. Res.*, 111, D15 214, doi :10.1029/2005JD006579, 2006.
- Powell, K. A., Hostetler, C. A., Liu, Z., Vaughan, M. A., Kuehn, R. E., Hunt, W. H., Lee, K.-P., Trepte, C. R., Rogers, R. R., Young, S. A., and Winker, D. M. : CALIPSO lidar calibration algorithms. Part I : Nighttime 532-nm parallel channel and 532- nm perpendicular channel, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 26, 2015–2033, 2009.
- Pun, B. K., Seigneur, C., and Lohman, K. : Modeling secondary organic aerosol formation via multiphase partitioning with molecular data, *Environ. Sci. Technol.*, 40, 4722–4731, 2006.
- Putaud, J.-P., Dingenen, R. V., Alastuey, A., Bauer, H., Birmili, W., Cyrys, J., Flentje, H., Fuzzi, S., Gehrig, R., Hansson, H., Harrison, R., Herrmann, H., Hittenberger, R., Hüglin, C., Jones, A., Kasper- Giebl, A., Kiss, G., Kousam, A., Kuhlbusch, T., Löschau, G., Maenhaut, W., Molnar, A., Moreno, T., Pekkanen, J., Perrino, C., Pitz, M., Puxbaum, H., Querol, X., Rodriguez, S., Salma, I., Schwarz, J., Smolik, J., Schneider, J., Spindler, G., ten Brink, H., Tursic, J., Viana, M., Wiedensohler, A., and Raes, F. : A European aerosol phenomenology - 3 : Physical and chemical characteristics of particulate matter from 60 rural, urban, and kerbside sites across Europe, *Atmospheric Environment*, 44, 1308–1320, doi :10.1016/j.atmosenv.2009.12.011, 2010.
- Querol, X., Pey, J., Pandolfi, M., Alastuey, A., Cusack, M., Perez, N., Moreno, T., Viana, M., Mihalopou- los, N., Kallo, G., and Kleanthous, S. : African dust contributions to mean ambient PM<sub>10</sub> mass-levels across the Mediterranean Basin, *Atmospheric Environment*, 43, 4266–4277, 2009.
- Ramanathan, V., Crutzen, P. J., Kiehl, J. T., and Rosenfeld, D. : Aerosols, Climate, and the Hydrological Cycle, *Science*, 294, 2119–2124, doi :10.1126/science.1064034, 2001.
- Remer, L. A., Kaufman, Y. J., Tanré, D., Mattoo, S., Chu, D. A., Martins, J. V., Li, R.-R., Ichoku, C., Levy, R. C., Kleidman, R. G., Eck, T. F., Vermote, E., and Holben, B. N. : The MODIS Aerosol Algorithm, Products and Validation, Special Section, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 62, 947–973, 2005.
- Remer, L. A., Kleidman, R. G., Levy, R. C., Kaufman, Y. J., Tanré, D., Mattoo, S., Martins, J. V., Ichoku, C., Koren, I., Yu, H., and Holben, B. N. : Global aerosol climatology from the MODIS satellite sensors, *J. Geophys. Res.*, 113, doi :10.1029/2007JD009661, 2008.
- Ridley, D. A., Heald, C. L., and Ford, B. : North African dust export and deposition : A satellite and model perspective, *Journal of Geophysical Research*, 117, 2012.

- Rio, C., Hourdin, F., and Chédin, A. : Numerical simulation of tropospheric injection of biomass burning products by pyro-thermal plumes, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 3463–3478, doi :10.5194/acp-10-3463-2010, 2010.
- Roberts, G. J. and Wooster, M. J. : Fire Detection and Fire Characterization Over Africa Using Meteosat SEVIRI, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 46 (4), 1200–1218, 2008.
- Rodriguez, S., Querol, X., Alastuey, A., and de la Rosa, J. : Atmospheric particulate matter and air quality in the Mediterranean : a review, *Environmental Chemistry Letters*, 5, 1–7, doi :10.1007/s10311-006-0071-0, 2007.
- Rothman, L., Gordon, I., Barbe, A., Chris Benner, D., Bernath, P., Birk, M., Boudon, V., Brown, L., Campargue, A., Champion, J., Chance, K., Coudert, L., Dana, V., Devi, V., Fally, S., Flaud, J.-M., Gamache, R., Goldman, A., Jacquemart, D., Kleiner, I., Lacome, N., Lafferty, W., Mandin, J.-Y., Massie, S., Mikhailenko, S., Miller, C., Moazzen-Ahmadi, N., Naumenko, O., Nikitin, A., Orphal, J., Perevalov, V., Perrin, A., Predoi-Cross, A., Rinsland, C., Rotger, M., Šimečková, M., Smith, M., Sung, K., Tashkun, S., Tennyson, J., Toth, R., Vandaele, A., and Auwera, V. : The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, V100, 533–572, 2009.
- Schuster, G., Dubovik, O., and Holben, B. : Angstrom exponent and bimodal aerosol size distributions, *Journal of Geophysical Research*, 111, doi :10.1029/2005JD006328, 2006.
- Sciare, J., Oikonomou, K., Favez, O., Liakakou, E., Markaki, Z., Cachier, H., and Mihalopoulos, N. : Long-term measurements of carbonaceous aerosols in the Eastern Mediterranean : evidence of long-range transport of biomass burning, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 5551–5563, 2008.
- Seiler, W. and Crutzen, P. : Estimates of gross and net fluxes of carbon between the biosphere and the atmosphere from biomass burning, *Climatic Change*, 2, 207–247, doi :10.1007/BF00137988, 1980.
- Seinfeld, J. and Pandis, S. : Atmospheric chemistry and physics : From air pollution to climate change, Wiley-Interscience, 1997.
- Shao, Y. and Lu, H. : A simple expression for wind erosion threshold friction velocity, *J. Geophys. Res.*, 105, 22 437 – 22 443, 2000.
- Shao, Y., Ishizuka, M., Mikami, M., and Leys, J. F. : Parameterization of size resolved dust emission and validation with measurements, *J. Geophys. Res.*, 116, doi :10.1029/2010JD014527., 2011.
- Skamarock, W. C. and Klemp, J. B. : A time-split nonhydrostatic atmospheric model for weather research and forecasting applications, *J. Comput. Phys.*, 227, 3465–3485, doi :10.1016/j.jcp.2007.01.037, 2008.
- Sow, M., Alfaro, S., Rajot, J., and Marticorena, B. : Size resolved dust emission fluxes measured in Niger during 3 dust storms of the AMMA experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 3881–3891, doi :10.5194/acp-9-3881-2009, 2009.
- Stern, R., Builtjes, P., Schaap, M., Timmermans, R., Vautard, R., Hodzic, A., Memmesheimer, M., Feldmann, H., Renner, E., Wolke, R., and Kerschbaumer, A. : A model inter-comparison study focussing on episodes with elevated PM10 concentrations, *Atmos. Environ.*, 42, 4567–4588, doi : 10.1016/j.atmosenv.2008.01.068, 2008.
- Stohl, A., Berg, T., Burkhardt, J. F., Fjæraa, A. M., Forster, C., Herber, A., Hov, Ø., Lunder, C., McMillan, W. W., Oltmans, S., Shiobara, M., Simpson, D., Solberg, S., Stebel, K., Strom, J., Tørseth, K., Treffeisen, R., Virkkunen, K., and Yttri, K. E. : Arctic smoke – record high air pollution levels in the European Arctic due to agricultural fires in Eastern Europe in spring 2006, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 511–534, 2007.
- Stokes, R. H. and Robinson, R. A. : Interactions in aqueous nonelectrolyte solutions, solute-solvent equilibria, *J. Phys. Chem.*, 70, 2126–2131, 1966.
- Stromatas, S., S. Turquet, L. Menut, H. Chepfer, J. C. Péré, G. Cesana, and B. Bessagnet : Lidar Signal Simulation for the Evaluation of Aerosols in Chemistry-Transport Models, *Geosci. Model Dev.*, 5, 1543–1564, doi :10.5194/gmd-5-1543-2012, 2012.

- Tanré, D., Bréon, F. M., Deuze, J. L., Dubovik, O., Ducos, F., Francois, P., Goloub, P., Herman, M., Lifermann, A., and Waquet, F. : Remote sensing of aerosols by using polarized, directional and spectral measurements within the A-Train : the PARASOL mission, *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 1383–1395, doi : 10.5194/amt-4-1383-2011, 2011.
- Taylor, K. E. : Summarizing multiple aspects of model performance in a single diagram, *Journal of Geophysical Research*, 106, 7183–7192, 2001.
- Textor, C., Schulz, M., Guibert, S., Kinne, S., Balkanski, Y., Bauer, S., Berntsen, T., Berglen, T., Boucher, O., Chin, M., Dentener, F., Diehl, T., Easter, R., Feichter, H., Fillmore, D., Ghan, S., Ginoux, P., Gong, S., Grini, A., Hendricks, J., Horowitz, L., Huang, P., Isaksen, I., Iversen, T., Kloster, S., Koch, D., Kirkev, A., Kristjansson, J. E., Krol, M., Lauer, A., Lamarque, J. F., Liu, X., Montanaro, V., Myhre, G., Penner, J., Pitari, G., Reddy, S., Seland, O., Stier, P., Takemura, T., and Tie, X. : Analysis and quantification of the diversities of aerosol life cycles within AeroCom, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1777–1813, 2006.
- Toon, O. and Ackerman, T. : Algorithms for the calculation of scattering by stratified spheres, *Applied Optics*, 20, 3657–3660, 1981.
- Tørseth, K., Aas, W., Breivik, K., Fjæraa, A. M., Fiebig, M., Hjellbrekke, A. G., Myhre, C. L., Solberg, S., and Yttri, K. E. : Introduction to the European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) and observed atmospheric composition change during 1972–2009, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 5447–5481, doi :10.5194/acp-12-5447-2012, 2012.
- Turquety, S. and al. : Fire emission inventory for the Euro-Mediterranean region : variability, uncertainty and applicability to short-term forecasting, in preparation, 2013.
- Turquety, S., Logan, J., Jacob, D., Hudman, R., Leung, F., Heald, C., Yantosca, R. M., Wu, S., Emmons, L. K., Edwards, D., and Sachse, G. : Inventory of boreal fire emissions for North America in 2004 : the importance of peat burning and pyro-convective injection, *Journal of Geophysical Research*, 112, 2007.
- Turquety, S., Hurtmans, D., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., Clerbaux, C., Josset, D., and Tsamalis, C. : Tracking the emission and transport of pollution from wildfires using the IASI CO retrievals : analysis of the summer 2007 Greek fires, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 4897–4913, 2009.
- Van de Hulst, H. : Light scattering by small particles, John Wiley, New York, 1957.
- van der Werf, G., Randerson, J., Giglio, L., Collatz, G., Kasibhatla, P., and Arellano Jr., A. : Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3423–3441, 2006.
- van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Mu, M., Kasibhatla, P. S., Morton, D. C., DeFries, R. S., Jin, Y., and van Leeuwen, T. T. : Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997–2009), *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11 707–11 735, doi :10.5194/acp-10-11707-2010, 2010.
- van Donkelaar, A., Martin, R. V., Brauer, M., Kahn, R., Levy, R., Verduzco, C., and Villeneuve, P. J. : Global Estimates of Ambient Fine Particulate Matter Concentrations from Satellite-Based Aerosol Optical Depth : Development and Application, *Environ Health Perspect.*, 118 (6), 847–855, doi : 10.1289/ehp.0901623, 2010.
- Van Leer, B. : Towards the ultimate conservative difference scheme. V - A second-order sequel to Godunov’s method, *J. Computational Phys.*, 32, 101–136, 1979.
- Vautard, R., Bessagnet, M., Chin, M., and Menut, L. : On the contribution of natural Aeolian sources to particulate matter concentrations in Europe : testing hypotheses with a modelling approach, *Atmospheric Environment*, 39, 3291–3303, 2005.
- Vautard, R., Maïdi, M., Menut, L., Beekmann, M., and Colette, A. : Boundary layer photochemistry simulated with a two-stream convection scheme, *Atmospheric Environment*, 41, 8275–8287, 2007.
- Vautard, R., Yiou, P., and van Oldenborgh, G. : The decline of fog, mist and haze in Europe during the last 30 years : a warming amplifier?, *Nature Geoscience*, 2, 115–119, doi :10.1038/NGEO414, 2009.

- Vuolo, M., Chepfer, H., Menut, L., and G.Cesana : Comparison of mineral dust layers vertical structures modelled with CHIMERE-DUST and observed with the CALIOP lidar., *Journal of Geophysical Research - Atmospheres*, 114, D09 214, doi :10.1029/2008JD011219, 2009.
- Wandinger, U., Tesche, M., Seifert, P., Ansmann, A., Müller, D., and Althausen, D. : Size matters : Influence of multiple scattering on CALIPSO light extinction profiling in desert dust, *Geophysical Research Letters*, 37, doi :10.1029/2010GL042815, 2010.
- Wesely, M. : Parameterization of Surface Resistances to Gaseous Dry Deposition in Regional-Scale Numerical Models, *Atm. Env.*, pp. 1293–1304, 1989.
- Whitby, K. and Cantrell, B. : Atmospheric aerosols : Characteristics and measurement, in : *Proceedings of the International Conference on Environmental Sensing and Assessment (ICESA)*. Institute of Electrical and Electronic Engineers (IEEE), IEEE 75-CH 1004-1, ICESA paper 29-1 (6pp), 1976.
- White, B. R. : *Encyclopedia of Fluid Mechanics*, Gulf Publishing, Houston, TX, USA, pp. 239–282, 1986.
- Winker, D. M. : Accounting for multiple scattering in retrievals from space lidar, *Proc. SPIE 5059*, 12th International Workshop on Lidar Multiple Scattering Experiments, 128, doi :10.1117/12.512352, 2003.
- Winker, D. M., M. A. Vaughan, A. O., Hu, Y., Powell, K. A., Liu, Z., Hunt, W. H., and Young, S. A. : Overview of the CALIPSO Mission and CALIOP Data Processing Algorithms, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 26, 2310–2323, 2009.
- Xoplaki, E., Gonzalez-Rouco, F. J., Luterbacher, J., and Wanner, H. : Wet season Mediterranean precipitation variability : influence of large-scale dynamics, *Climate Dynamics*, 23, 63–78, 2004.
- Young, S. and Vaughan, M. : The Retrieval of Profiles of Particulate Extinction from Cloud-Aerosol Lidar Infrared Pathfinder Satellite Observations (CALIPSO) Data : Algorithm Description, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 26, 1105–1119, 2009.
- Yu, H., Chin, M., Winker, D. M., Omar, A. H., Liu, Z., Kittaka, C., and Diehl, T. : Global view of aerosol vertical distributions from CALIPSO lidar measurements and GOCART simulations : Regional and seasonal variations, *J. Geophys. Res.*, 115, D00H30, doi :10.1029/2009JD013364, 2010.